B. Fricke

Frankfurt a/main 1970.

ZUR CHEMIE DER ÜBERSCHWEREN ELEMENTE

INAUGURAL - DISSERTATION

ZUR

ERLANGUNG DES DOKTORGRADES

DER

NATURWISSENSCHAFTLICHEN FAKULTÄT

DER

JOHANN - WOLFGANG - GOETHE - UNIVERSITÄT

ZU

FRANKFURT AM MAIN

VORGELEGT VON

BURKHARD FRICKE

AUS

PR. FRIEDLAND

JANUAR 1970

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Gedruckt mit Genehmigung der Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Frankfurt am Main:

Dekan:	Prof. Dr. G. Schneider
Leiter der Arbeit:	Prof. Dr. W. Greiner
Erstgutachter:	Prof. Dr. W. Greiner
Zweitgutachter:	Priv.-Doz. Dr. K. Hensen

Tag der mündlichen Prüfung: 22.4.70

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41545305_0029

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Abstract	1
Einleitung	2
I. Theorie der Hartree-Fock-Slater Rechnungen	5
1. Die Hartree-Fock Gleichungen	5
2. Näherungen der Hartree-Fock Gleichungen	7
3. Lösung der Hartree-Fockschen Dirac Gleichung	10
4. Zur Durchführung der Rechnungen	13
II. Ergebnisse der Hartree-Fock-Slater Rechnungen	15
1. Die innersten Elektronenschalen in den Atomen	15
2. Betrachtungen zur Chemie der Elemente	19
a. Die Actiniden	19
b. Die Elemente Z = 104 - 112	22
c. Die Elemente Z = 113 - 120	28
d. Die Elemente Z = 121 - 155	32
e. Die Elemente Z = 156 - 172	35
III. Zusammenfassung und Ausblick	40
Literaturverzeichnis	43
Tabellen	47
Figuren	57

Abstract

The chemical elements up to Z = 172 are calculated with a relativistic Hartree-Fock-Slater program taking into account the effect of the extended nucleus. Predictions of the binding energies, the X-Ray spectrum and the number of electrons inside the nucleus are given for the inner electron shells.

The electron configurations of the elements up to Z = 120 were found to be the same as the calculations of Waber et.al., which agrees with a trivial continuation of the Periodic Table. For all elements between Z = 104 and Z = 120, predictions of their chemical properties are given and are compared with the previous known extrapolations.

For the elements Z = 156 - 172 predictions of the chemical behaviour and a proposal for the continuation of the Periodic System are given. The eighth chemical period ends with a noble metal at Z = 164 located below Mercury. The ninth period starts with an alkali and alkaline earth metal and ends similarly to the second and third period with a noble gas at Z = 172.

Einleitung

Die Fortsetzung des Schalenmodells nach hohen Protonen- und Neutronenzahlen hin hat ergeben, daß bei Z = 114 und Z = 164[1-3] ausgeprägte magische Schalenabschlüsse zu erwarten sind. Untersuchungen der Potentialenergieflächen, die im wesentlichen durch Aufsummation der Einteilchenenergien nach dem Nilsson Modell und der Berücksichtigung der Coulombenergie bei zugelassenen Kerndeformationen a_o und a_2 berechnet worden sind, zeigen, daß die hypothetischen Kerne in der Nähe dieser hohen magischen Protonen- und Neutronenzahlen stabil sein könnten. Stabil ist dabei in dem Sinne gemeint, daß Lebensdauern in der Größernordnung bis zu vielen Jahren (eventuell Jahrtausenden) zu erwarten sind. Bei diesen Untersuchungen stellte es sich außerdem heraus, daß die Stabilität nicht nur auf die magischen Zahlen selbst beschränkt ist, sondern größere Gebiete zwischen Z = 110 - 120 und Z = 160 - 170 umfaßt[3].

Der Nachweis dieser Superschweren Kerne wird durch die Beobachtung der Zerfallsprodukte mit kernphysikalischen Methoden erfolgen. Sind die Lebensdauern jedoch groß, bietet sich zusätzlich der Nachweis durch die Massenspektroskopie, die optische Spektroskopie und die charakteristische Röntgenstrahlung oder gar durch chemische Reaktionen an.

Diese Nachweismethoden für die bis jetzt hypothetischen Elemente sind nicht nur im Hinblick auf den baldigen Bau von Schwerionenbeschleunigern interessant, sondern auch darauf, diese Elemente in der Natur selbst zu finden. Zum Beispiel erwartet man bei Nova- und Supernovaexplosionen, bei denen sehr große Energien frei werden, die Bildung von Superkernen. Das gleiche gilt für die erst vor kurzem entdeckten Pulsare, von denen man inzwischen weiß, daß es sich um Neutronensterne handelt, an deren Oberfläche mit Gebieten gerechnet werden muß, in denen Protonen und Neutronen im richtigen Mischungs-

verhältnis vorkommen, so daß dort ebenfalls leicht Überschwere Elemente entstehen könnten. Der Nachweis sollte den Astrophysikern mit der optischen und Röntgenspektroskopie möglich sein. Dabei sind zwei Aspekte besonders interessant. Zum einen kann man damit direkt Aussagen über Größe und Gestalt der Kerne erhalten, zum anderen liefert die Beobachtung der innersten Schalen[4] zum erstenmal Informationen aus einem Bereich, in dem $Z\alpha$, der Entwicklungsparameter der elektromagnetischen Wechselwirkung, nicht mehr klein ist und damit die Anwendung der üblichen Störungsrechnung zur Berücksichtigung der höheren quantenelektrodynamischen Effekte nicht mehr möglich ist[5].

Ein weiterer Aspekt ist die Frage nach dem chemischen Verhalten dieser Elemente und ihrer Einordnung in das bekannte Periodensystem. Da die besten chemischen Methoden den Nachweis von weniger als 10^{-11}g erlauben und es heutzutage mit speziellen Trägertechniken sogar möglich ist, das chemische Verhalten einzelner Atome zu bestimmen, rücken die Überschweren Elemente, wenn sie erst einmal produziert werden können, auch in den von der Chemie erfaßbaren Bereich. Aber auch für eine eventuelle Entdeckung in der Natur ist es wichtig, ihre chemischen Eigenschaften und ihre Einordnung in das Periodensystem zu kennen. Die Voraussage, daß sich das Element 114 chemisch ähnlich verhält wie Blei, wurde bereits von Flerov ausgenutzt, der in alten Bleigläsern nach Zerfallsspuren dieses Elementes gesucht hat[6].

Diese Arbeit will hauptsächlich versuchen, Voraussagen über das chemische Verhalten der Superschweren Elemente zu machen.

In Teil I wird kurz die Theorie der Hartree-Fock Gleichungen und der Slaterschen Näherung gebracht. Es folgt die Beschreibung der Lösung der Diracgleichung, die auch für den Bereich $Z > 137$ gültig ist, und des selbstkonsistenten Hartree-Fock-Slater Rechenprogramms,

mit dem die Elemente bis Z = 172 berechnet worden sind.

In Teil II werden die Ergebnisse behandelt, die die innersten Elektronenschalen der Atome betreffen. Nach der Diskussion der chemischen Eigenschaften der Actiniden werden aus den Ergebnissen der Rechnungen und der Extrapolation des bekannten Teiles des Periodensystems einige chemische und physikalische Eigenschaften für die unbekannten Elemente Z = 104 - 112, Z = 113 - 120, Z = 121 - 155 und Z = 156 - 172 getrennt diskutiert.

In Fig. 1 ist ein Vorschlag für das bis zum Element Z = 172 erweiterte Periodische System angegeben. Bis zum Element Z = 120 erwartet man die einfache Fortsetzung. Die zu den Lanthaniden und Actiniden analogen Elemente von Z = 121 bis Z = 155 faßt man unter dem Namen der Super-Actiniden Serie zusammen. Die achte chemische Periode wird mit einem Edelmetall bei Z = 164 abgeschlossen[7]. Die neunte Periode besteht, wie die zweite und dritte Periode, nur aus einem Alkali- und Erdalkalimetall und aus sechs p Elementen, an deren Ende ein Edelgas bei Z = 172 steht.

I Theorie der Hartree-Fock-Slater Rechnungen

1. Die Hartree-Fock Gleichnungen

Das Problem eines gebundenen Elektrons in einem zentralsymmetrischen Coulombpotential ist das einzige atomare Problem, das sich - zumindest im Rahmen der Schrödinger-Theorie - analytisch exakt berechnen läßt. Schon beim Zweielektronenatom, dem Heliumatom, lassen sich Energieeigenwert und Wellenfunktion nur mehr approximativ angeben.

In den Arbeiten von Hartree und Fock[8)] wurde die Grundlage für die Berechnung des atomaren Vielkörperproblems gelegt. Das Hartree-Focksche Verfahren geht davon aus, daß die Wellenfunktion des Atoms durch eine Slaterdeterminante gegeben ist, die so zu variieren ist, daß die totale Energie

$$E = \frac{1}{n!} \int \langle \Psi^* | H | \Psi \rangle \, d\tau_1 \ldots d\tau_n \tag{1}$$

zu einem Maximum wird. Dabei ist n die Anzahl der Hüllenelektronen und H der Hamiltonoperator des Systems, der sich folgendermaßen schreiben läßt:

$$\begin{aligned} H &= H_0 + H_{int} \\ H_0 &= \sum_i H_0^{(i)} = \sum_i T^{(i)} - \sum_i \frac{Ze^2}{|\vec{r}_i|} \qquad H_{int} = \sum_{i<j} \frac{e^2}{|\vec{r}_{ij}|} \, . \end{aligned} \tag{2}$$

Daraus lassen sich die n Hartree-Fock Gleichungen ableiten, die folgende Gestalt haben:

$$\begin{aligned} & H_0^{(i)} \psi_i(\vec{r}) + \left[\sum_{k=1}^{n} \int \psi_k^*(\vec{r}\,') \psi_k(\vec{r}\,') \frac{e^2}{|\vec{r} - \vec{r}\,'|} d\tau' \right] \psi_i(\vec{r}) \\ & - \sum_{k=1}^{n} \left[\int \psi_k^*(\vec{r}\,') \psi_i(\vec{r}\,') \frac{e^2}{|\vec{r} - \vec{r}\,'|} d\tau' \right] \psi_k(\vec{r}) = E_i \psi_i(\vec{r}) \, . \end{aligned} \tag{3}$$

Die Lösungen dieser n gekoppelten Integrodifferentialgleichungen liefern die Energieeigenwerte und Wellenfunktionen der n Hüllenelektronen eines Atoms.
Die Gesamtenergie wird zu

$$E_T = \sum_i \int \psi_i^*(\vec{r})\, H_0\, \psi_i(\vec{r})\, d\tau$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_{i,k} \iint d\tau\, d\tau'\, \psi_i^*(\vec{r})\, \psi_k^*(\vec{r}')\, \frac{e^2}{|\vec{r}_{ij}|} \left[\psi_i(\vec{r})\, \psi_k(\vec{r}') - \psi_i(\vec{r}')\, \psi_k(\vec{r}) \right]. \qquad (4)$$

Um Gleichung (3) nacheinander für jedes Elektron getrennt lösen zu können, schreiben wir sie um in

$$T^{(i)} \psi_i(\vec{r}) - \frac{Z e^2}{|\vec{r}_i|} \psi_i(\vec{r}) + \left[\sum_{k=1}^{n} \int \psi_k^*(\vec{r}')\, \psi_k(\vec{r}')\, \frac{e^2}{|\vec{r} - \vec{r}'|}\, d\tau' \right] \psi_i(\vec{r})$$

$$- \left[\sum_{k=1}^{n} \int \frac{\psi_i^*(\vec{r})\, \psi_k(\vec{r}')\, \psi_k(\vec{r})\, \psi_i(\vec{r}')}{\psi_i^*(\vec{r})\, \psi_i(\vec{r})}\, \frac{e^2}{|\vec{r} - \vec{r}'|}\, d\tau' \right] \psi_i(\vec{r}) = E_i\, \psi_i(\vec{r}). \qquad (5)$$

Der erste Term beschreibt die kinetische Energie des i-ten Elektrons; der zweite Term stellt die Wechselwirkung mit dem Kern dar, wobei für den ausgedehnten Kern, wie er hier behandelt werden soll, statt Z das Integral über die Protonenverteilung $\rho(r)$ zu stehen hat. Der dritte Term ist die direkte Wechselwirkung des i-ten Elektrons mit allen Elektronen einschließlich sich selbst, und der vierte Term stellt die Austauschwechselwirkungsenergie zwischen dem i-ten Elektron und allen anderen dar. Gleichzeitig subtrahiert dieses Glied für k = i die im dritten Term enthaltene Selbstwechselwirkung.

2. Näherungen der Hartree-Fock Gleichungen

a. Radialsymmetrie

Nimmt man an, daß die Elektronendichte $\rho(r,\vartheta,\varphi)$ im Atom kugelsymmetrisch ist, dann läßt sich

$$\sum_{k=1}^{n} \psi_k^*(\vec{r})\, \psi_k(\vec{r}) = \rho(r) \tag{6}$$

schreiben. Diese Näherung ist mit wachsender Kernladungszahl Z eine zunehmend gute Näherung, da alle abgeschlossenen Schalen im Atom Kugelsymmetrie besitzen. Ein Fehler entsteht nur für die äußersten nicht abgeschlossenen Schalen, in denen die Wechselwirkungsenergie der über die Winkel gemittelten Elektronendichte sicherlich nicht ganz exakt berechnet wird. Einzige Ausnahme davon bilden die äußeren s Elektronen, die a priori kugelsymmetrisch sind.

Mit dieser Annahme der Radialsymmetrie läßt sich dann das Elektronenwechselwirkungspotential einfach ausrechnen zu

$$V_i = \sum_{k=1}^{n} \int \psi_k^*(\vec{r}\,')\, \psi_k(\vec{r}\,') \frac{e^2}{|\vec{r}-\vec{r}\,'|}\, d\tau' = \int \rho(r') \frac{e^2}{|\vec{r}-\vec{r}\,'|}\, d\tau'$$

$$= 4\pi e^2 \left\{ \frac{1}{r} \int_0^r r'^2 \rho(r')\, dr' + \int_r^\infty r' \rho(r')\, dr' \right\} . \tag{7}$$

b. Näherung für das Austauschpotential

Das Austauschwechselwirkungspotential in (5), das bei einer exakten Berechnung durch seine Nichtlokalität und die dabei notwendige Kenntnis des Ergebnisses große numerische Schwierigkeiten mit sich bringt, ist von Slater durch einen einfachen Ausdruck (der natürlich auch wieder kugelsymmetrisch ist) ersetzt worden[9)]

$$V_{exch} = -\left(81\, \rho(r) / 8\pi\right)^{1/3} . \tag{8}$$

Diese Näherung der Austauschwechselwirkung von Slater ist wiederum eine gute Näherung für die Austauschwechselwirkung eines freien Elektronengases. Da das Austauschpotential jedoch klein ist (etwa ein Dreißigstel des Coulombintegrals), zeigt es sich, daß diese Approximation gut genug ist, die Energieeigenwerte aller Elektronen bis auf einige Prozent an die experimentellen Werte anzunähern. Gasphar, Kohn und Sham und Cowan et. al.[10] haben das Austauschpotential erneut berechnet und gefunden, daß das von Slater angegebene um den Faktor 1,5 zu groß ist. In neueren Arbeiten[11], die speziell die Größe des Austauschterms untersucht haben, sind ins Austauschpotential Parameter aufgenommen worden, mit denen das Minimum der totalen Energie des Atoms gesucht wird. Speziell benutzte Lindgren[12] den Ansatz

$$V_{exch} = -\frac{C}{r}\left(81\, r^{n} \left(4\pi r^{2} \rho(r)\right)^{m} / 32\pi^{2}\right)^{1/3} . \qquad (9)$$

Da m stets sehr nahe bei 1 liegt, geben Rosén et. al.[13] das Ergebnis für verschiedene Kerne in der C, n Ebene an. Es zeigt sich, daß die leichten Kerne bei $C \approx 0.8 - 0.9$ und $n \approx 1.1 - 1.2$ liegen und daß sich, je schwerer die Kerne werden, Werte für $C \to 2/3$ und $n \to 1$ ergeben. Eine kleine Veränderung des Austauschterms liefert nur sehr kleine Veränderungen der Wellenfunktionen. Durch die Größe des Coulombintegral macht sich diese Veränderung jedoch relativ stark bemerkbar. Deshalb kann die totale Energie auch bei dieser Wahl der Parameter zu einem Minimum werden.

Das Austauschpotential hat leider die unangenehme Eigenschaft, bei sehr großen Radien relativ zum direkten Term sehr groß zu werden und ihn überzukompensieren. Dadurch bekommt das Potential einen unphysikalischen Nulldurchgang. Latter[14] hat vorgeschlagen, das Potential künstlich gleich 1/r zu setzen, sobald das Gesamtpotential diesen Wert erreicht. Diese Näherung hat sich als sehr gut erwiesen und ist deshalb von allen Arbeiten, die nicht exakte Hartree-Fock Rechnungen durchführen, übernommen worden. Geht man mit dem so

gefundenen Potential in die Schrödinger oder Diracgleichung ein, so erhält man einen Satz von Lösungswellenfunktionen, aus denen sich wieder nach Gleichung (6) die Elektronendichte angeben läßt, die wiederum das Potential bestimmt. Sind Eingangs- und Ausgangspotential gleich, so ist das Problem in der Hartree-Fock-Slaterschen Näherung selbstkonsistent gelöst.

Eine ganze Reihe von nicht-relativistischen und relativistischen numerischen Selbstkonsistenzrechnungen für den Punkt - bzw. den ausgedehnten Kern - mit der Hartree, Hartree-Fock oder Hartree-Fock-Slater Methode sind in den letzten Jahren ausgeführt worden. Die wichtigsten sind im Literaturverzeichnis zusammengestellt[15-21].

3. Lösung der Hartree-Fockschen Diracgleichung

Die einzelnen Wellenfunktionen und Energieeigenwerte sind Lösungen der n Hartree-Fock Gleichungen (5). Setzen wir für den Hamiltonoperator der kinetischen Energie den der Diracgleichung ein, erhalten wir

$$\left[c\vec{\alpha}\vec{p} + \beta m_0 c^2 + V(r)\right] \psi_i = E_i \psi_i \quad . \tag{10}$$

Um den Energieeigenwert von der Ruhemasse zu befreien, schreiben wir (10) um in

$$\left[c\vec{\alpha}\vec{p} + (\beta - 1) m_0 c^2 + V(r)\right] \psi_i = \varepsilon_i \psi_i \quad . \tag{11}$$

Dabei sind $\vec{\alpha}$ und β die Diracmatrizen

$$\vec{\alpha} = \begin{pmatrix} 0 & \vec{\sigma} \\ -\vec{\sigma} & 0 \end{pmatrix} \quad , \quad \beta = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad , \tag{12}$$

die sich selbst wieder aus den Paulischen Zweiermatrizen $\vec{\sigma}$ und der zwei mal zwei Einheitsmatrix zusammensetzen. Mit den Paulischen Spinvektoren

$$\chi_{1/2} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \chi_{-1/2} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \tag{13}$$

lassen sich die Drehimpulsfunktionen

$$\Omega_{\varkappa m}(\hat{r}) = \sum_{\mu} (\ell\, 1/2\, j \mid m-\mu\, \mu\, m)\, Y_{\ell, m-\mu}(\hat{r})\, \chi_{\mu} \tag{14}$$

bilden, mit denen sich die allgemeine vierkomponentige Lösung der Wellenfunktion (Viererspinoren) schreiben läßt zu

$$\psi_{n\varkappa m}(\vec{r}) = \frac{1}{r} \begin{pmatrix} g_{n\varkappa}(r)\, \Omega_{-\varkappa m}(\hat{r}) \\ i f_{n\varkappa}(r)\, \Omega_{\varkappa m}(\hat{r}) \end{pmatrix} \quad . \tag{15}$$

Dabei ist $\varkappa = -(1-j)\cdot(2j+1)$, j der totale Drehimpuls und m dessen Projektion auf die z-Achse. f(r) und g(r) sind die Radialwellenfunktionen der kleinen und der großen Komponenten der Spinoren. Mit $r.f(r) = F(r)$ und $r.g(r) = G(r)$ erfüllen sie die gekoppelten Differentialgleichungen

$$\frac{d}{dr}\begin{pmatrix} F(r) \\ G(r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\varkappa/r & \frac{1}{\hbar c}(\varepsilon - V(r)) \\ \frac{1}{\hbar c}(-\varepsilon + V(r) + 2mc^2) & \varkappa/r \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} F(r) \\ G(r) \end{pmatrix} . \tag{16}$$

Werden alle Längen in Einheiten des Bohrschen Wasserstoffradius $a_H = \hbar^2/mc^2$, alle Energien in 2 Rydberg (Ry) - den sogenannten Hartree-Einheiten - und das Potential in Einheiten von e^2 angegeben, so erhalten wir

$$\frac{d}{dr}\begin{pmatrix} F(r) \\ G(r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\varkappa/r & \alpha(\varepsilon - V(r)) \\ -\alpha(\varepsilon - V(r)) + 2/\alpha & \varkappa/r \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} F(r) \\ G(r) \end{pmatrix} . \tag{17}$$

Die Lösung dieser gekoppelten Differentialgleichung erfolgt durch numerische Integration mit Hilfe der 4-Punkteformel von Milne[21]. Dazu werden an den ersten fünf Stützstellen die Werte der Wellenfunktion in der Nähe des Ursprungs benötigt, die man sich im Falle eines ausgedehnten Kernes durch folgende Entwicklung der Wellenfunktion am Ursprung beschaffen kann:

$$\begin{pmatrix} F(r) \\ G(r) \end{pmatrix} = r^s \sum_{n=0}^{\infty} \begin{pmatrix} a_n \\ b_n \end{pmatrix} r^n . \tag{18}$$

Geht man damit in die Diracgleichung (17) ein, so lassen sich die Koeffizienten a_n und b_n ausdrücken durch

$$a_n = \frac{\alpha(\varepsilon - V(0))\, b_{n-1}}{s + \varkappa + n} \quad \text{und}$$

$$b_n = \frac{(-\alpha(\varepsilon - V(0)) + 2/\alpha)\, a_{n-1}}{s - \varkappa + n} \tag{19}$$

mit $s = |\varkappa|$ und $a_0 = (s - \varkappa)^{1/2}$, $b_0 = (s + \varkappa_0)^{1/2}$.

Dabei geht nur das Potential am Ursprung in die Rechnung ein. Dies ist eine sehr gute Näherung, weil sich das Potential über die fünf Punkte hinweg, die damit berechnet werden, kaum ändert.
Die Integration läuft von innen bis über das letzte Hauptmaximum hinaus und wird dort an die von außen nach innen integrierte Lösung angepaßt. Dabei wird die Tatsache ausgenutzt, daß sich weit draußen die große zur kleinen Komponente verhält wie $-((\varepsilon+2/\alpha^2)/(-\varepsilon))^{1/2}$.
Dieser äußerste Punkt, in dem die Wellenfunktion praktisch zu Null geworden ist, wird durch die Gleichung

$$(V(r) - \varepsilon) \cdot r^2 \approx 60 \qquad (20)$$

festgelegt. Für den kleinen Rest der Wellenfunktion, der noch außerhalb dieser Stelle liegt, wird das asymptotische Verhalten $\exp(-\sqrt{2\varepsilon} \cdot r)$ angesetzt. Die mit einem bestimmten Energieeigenwert berechnete große Komponente der Radialwellenfunktion der Integration von außen nach innen wird am "Matching"-Radius an den entsprechenden Wert der Integration von innen nach außen angepaßt. Die um den gleichen Faktor veränderte kleine Komponente der Integration von außen nach innen stimmt aber im Normalfalle mit dem von innen berechneten Wert noch nicht überein. Diese Tatsache wird ausgenutzt, um einen verbesserten Energieeigenwert nach folgender Gleichung zu bestimmen[15]:

$$\Delta E = \frac{s}{\alpha} \left\{ \frac{g(r_+)\,(f(r_+) - f(r_-))}{\int_0^\infty (f^2 + g^2)\, dr} \right\} . \qquad (21)$$

Die ganze Integration wird so oft wiederholt, bis der Wert $\Delta E/E$ unter einer gewissen Schranke bleibt, die hier meist zu $5 \cdot 10^{-6}$ gewählt wurde.

4. Zur Durchführung der Rechnungen

Da der Kernradius von der Größenordnung 10 Fermi ist, die äußersten Wellenfunktionen eines Atoms jedoch einige Å Ausdehnung haben, ist die lineare Unterteilung in Stützstellen bei der numerischen Integration unmöglich. Neben der Möglichkeit, einer Anzahl äquidistanter Stützstellen die gleiche Anzahl doppelt weiter Stützstellen folgen zu lassen usw.[16,20], erweist es sich als optimalste Möglichkeit, eine logaritmische Unterteilung in der Art zu wählen, daß $r_{n+1} = r_n \cdot d$ gilt, wobei d eine Zahl ist, die etwas größer als 1 ist. Zusätzlich müssen die Nebenbedingungen erfüllt werden, daß der erste Punkt tief im Innern des Kernes, der letzte Punkt weit außerhalb des Atoms liegt und die Zahl der Stützstellen dazwischen in erträglichen Grenzen bleibt. Der innerste Punkt wurde hier zu ca. 1 Fermi, der äußerste zu ca. 30 Bohrsche Radien und die Zahl der Stützstellen zu 425 gewählt. Diese Unterteilung ist immer noch so günstig, daß die ersten 25 Stützstellen im Kern liegen.

Berechnet man sich nun für eine gegebene Dichteverteilung (meist der des Nachbarkernes oder der des Thomas-Fermi Potentials) das zugehörige Potential und daraus die Wellenfunktionen aller Elektronen, erhält man nach Gleichung (6) eine neue Dichteverteilung. Um die Stabilität des Rechenverfahrens zu gewährleisten, wird eine neue Dichteverteilung aus der alten und der berechneten gebildet[16,18,20]

$$\rho_{neu} = \varphi\, \rho_{berechnet} + (1-\varphi)\, \rho_{alt} \,, \tag{22}$$

wobei φ meist zu 0.15 gewählt wurde.

Die Iteration wird beendet, wenn

$$\left| \frac{V_{alt} - V_{neu}}{V_{alt}} \right| < \delta \tag{23}$$

ist, wobei für δ meist $5 \cdot 10^{-5}$ gesetzt wurde.

Da die Berechnung aller Energieniveaus für einen schweren Kern ca. 1 Stunde auf der Univac 1108 dauert, wurde δ meist $3 \cdot 10^{-4}$ gesetzt.

Kontrollrechnungen zeigen, daß die totalen Energien und Energieeigenwerte nur ganz schwach von dieser Änderung abhängen und die gewonnenen Werte in den meisten Fällen vollkommen genügen. Die relativen Ungenauigkeiten in den totalen Energien betragen nur ca. $\pm$ 0.02 Ry. Dieser Wert ist besser als die prinzipielle Ungenauigketi von ca. $\pm$ 0.1 Ry, die von Schwerpunkteffekten herrührt[22]. Die absoluten totalen Energien sind dagegen relativ unsicher und weisen bei verschiedenen Berechnungsarten erhebliche Unterschiede auf.

Die Dichteverteilung der Kernes wurde stets als eine Fermiladungsverteilung

$$\rho_k(r) = \frac{\rho_0}{1 + \exp(4 \ln 3 (r-c)/t)} \qquad (24)$$

mit $c = 1.2\ A^{1/3}$ fm und $t \approx 2.5$ fm vorgegeben.

Für $Z > 100$ wurde

$$A = 0.00733\ Z^2 + 1.3\ Z + 63.6 \text{ gesetzt}^{23)}.$$

Das original Hartree-Fock-Slater Programm wurde von der Gruppe um Liberman , Waber, Mann u.a. in Los Alamos geschrieben. Am prinzipiellen Aufbau des Programms wurde nichts geändert, einiges jedoch an der internen Organisation, was es ermöglichte, mit einem Minimum an Aufwand eine große Zahl von Rechnungen durchzuführen. Eigentliche Programmänderungen wurden nur bei der Lösung der Diracgleichung vorgenommen, die eine schnellere Konvergenz zur Folge hatten. Um Anfangswerte bei der Iteration in neuen Bereichen des Periodensystems zu haben, wurde das Thomas-Fermi Potential[24] eingebaut, das wahlweise genommen werden kann.

II Ergebnisse der Hartree-Fock-Slater Rechnungen

1. Die innersten Elektronenschalen in den Atomen

Die Diracgleichung liefert für das Wasserstoffproblem eines Punktkernes folgende Energieeigenwerte:

$$E_n = m\left[1 + \left(\frac{Z\alpha}{n - (j + 1/2) + \sqrt{(j+1/2)^2 - (Z\alpha)^2}}\right)^2\right]^{-1/2} . \qquad (25)$$

Danach wird der Energieeigenwert für die 1s Elektronen für $Z > 137$ imaginär. Einen Ausweg aus diesem Dilemma bietet zunächst die Berücksichtigung des ausgedehnten Kernes[4, 25], so wie es hier durchgeführt worden ist. Bereits 1945 haben Pomerantschuk und Smorodinsky[26] diese Tatsache ausgenutzt, um eine Abschätzung der Kerngröße zu geben, die erforderlich ist, um dem innersten gebundenen Zustand eine Bindungsenergie von $-mc^2$ zu geben. Diese physikalische Grenze ist dadurch gegeben, daß dort der Elektronenzustand von oben her in das Kontinuum der Elektronen mit negativen Energien eintaucht. Die Frage, ob dies in der Natur realisiert wird oder nicht, läßt sich allerdings nicht durch Lösen der Einteilchen-Diracgleichung beantworten. Die quantenelektrodynamischen Effekte der Vakuumpolarisation und der Fluktuation werden das Verhalten des Elektronenzustandes bei Annäherung an das negative Kontinuum derart mitbestimmen, daß es durchaus möglich ist, daß das Elektronenniveau nicht eintaucht, sondern einem endlichen Grenzwert zustrebt[5]. Dies würde physikalisch bedeuten, daß es in der Natur eine gewisse maximale Feldstärke gibt, die nicht überschritten werden kann. Erst die exakte Berücksichtigung aller Elektronen des Vakuums im Feld des Kernes wird eine Lösung bringen. Ein theoretischer Lösungsansatz für diese Quantenelektrodynamik starker Felder ist von Reinhard[5] vorgeschlagen worden. Konkrete Rechnungen dazu fehlen jedoch noch. Die quantenelektrodynamischen Effekte in Elektronenatomen sind bisher nur in Störungs-

rechnung angegeben worden und auch dafür nur für kleine Z, mit Ausnahme eines Wertes bei Z = 80[27]. Dabei zeigt es sich, daß die Fluktuation und die Vakuumpolarisation beim Wasserstoff $\approx 10^{-5}$ und beim Quecksilber $\approx 5.10^{-3}$ der Bindungsenergie ausmachen, das heißt,es ist ein deutliches Ansteigen des Effektes zu beobachten.

Daraus ersieht man, daß alle Lösungen der Diracgleichung für hohe Z, wie sie z.B. in den Arbeiten von Rein[25] und von Pieper und Greiner[4] für eine kastenförmige Ladungsverteilung des Kernes angegeben wurden, nur eine nullte Näherung darstellen können. Die Lösung von Pieper et.al. für die innersten Schalen für das reine Wasserstoffproblem sind in Fig. 2 eingezeichnet. Für alle realistischen Kernpotentiale und gar bei Mitnahme der Elektron-Elektron Wechselwirkung läßt sich eine analytische Lösung nicht mehr angeben. Diese Rechnungen können nur noch mit dem hier beschriebenen Rechenprogramm numerisch ausgeführt werden. Eine wesentliche Verbesserung der Werte von Pieper erreicht man bereits, wenn man die Lösungen für eine realistische Fermiladungsverteilung für den Kern und das statistische Thomas-Fermi Potential für die Elektronen ansetzt. Dabei wird das Potential außerhalb des Kernes[24]

$$V(x) = Z \cdot \Phi(x) \quad \text{mit} \tag{26}$$

$$\Phi(x) = \left(1 + 0.02747 \cdot x^{1/2} + 1.243 \cdot x - 0.1486 \cdot x^{3/2} + 0.2302 \cdot x^{2} + 0.007298 \cdot x^{5/2} + 0.006944 \cdot x^{3}\right)^{-1} \tag{27}$$

und $x = \frac{r}{\mu}$ mit $\mu = \frac{1}{4}\left(\frac{9\pi^2}{2Z}\right)^{1/3} = \frac{0.8853}{Z^{1/3}}$.

Die damit berechneten Energieeigenwerte sind ebenfalls in Fig. 2 eingetragen. Im Bereich von Z = 160 bis Z = 170 sind die Energieeigenwerte der innersten Zustände der Selbstkonsistenzrechnung nach Hartree-Fock-Slater ebenfalls eingezeichnet. Der Vergleich zwischen diesen Rechnungen zeigt, wie sehr sich der kritische Wert

für Z, bei dem der 1s-Zustand in das negative Kontinuum eintaucht, verschiebt. Der Einfluß der quantenelektrodynamischen Effekte sollte diese Abschirmung noch weiter vergrößern. In der gleichen Richtung wirkt auch die Tatsache, daß die Austauschwechselwirkung in der Slaterschen Form durch relativistische Korrekturen vermindert wird, was ebenfalls ein Anheben der Elektronenniveaus zur Folge hat. Da diese sogenannte Breitsche Korrektur[28)] nur als erstes Glied einer Entwicklung in $Z\alpha$ bekannt ist, hier aber bei sehr hohen Z gerechnet wird, wurde sie in allen Rechnungen unberücksichtigt gelassen. Aus diesen Gründen werden die eventuell einmal beobachtbaren Röntgenlinien eine geringere Energie haben, als die hier berechnete. In Tabelle 1 sind die Hauptlinien des Röntgenspektrums für das Element Z = 164 zusammengestellt.

Um einen Eindruck zu bekommen, wie stark die Bindungsenergie von den Kernparametern abhängt, sind für die Kerne Z = 164 und Z = 114 die Parameter der Fermi-Ladungsverteilung c und t etwas variiert worden. In Tabelle 2 sind die Ergebnisse zusammengefaßt. Man erkennt, daß die Kernparameter aus den Spektren nur grob bestimmt werden können, da alle anderen unbekannten Größen (Lamb-Shift, ungenauer Austauschterm) auch noch in den Bindungsenergien enthalten sind.

Dagegen läßt sich die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen am Kernort bzw. die Zahl der Elektronen im Kern relativ sicher angeben. Diese Größe spielt bei allen Experimenten, bei denen es auf die Wechselwirkung der Ladungsverteilung des Kernes mit der Elektronendichte am Kernort ankommt, eine Rolle. Meßbar sind dabei nur Differenzen zwischen zwei verschiedenen Elektronendichten am Kernort bzw. verschiedene Ladungsverteilungen des Kernes, die durch die Isotopieverschiebung und die Isomerieverschiebung nachgewiesen werden.

Die Überlappung der Elektronenwellenfunktion mit dem Kern wird anschaulich durch die Zahl der Elektronen im Kerninneren gekennzeichnet.

Diese Größe ist besonders wichtig bei der Berechnung des Elektroneneinfangs, welcher einer der wichtigsten Zerfallskanäle für die Überschweren Elemente ist[29]. In Tabelle 3 sind die Zahl der Elektronen im Kern für Blei, Uran, Z = 114 und Z = 164 mit einer Aufteilung auf die verschiedenen Unterschalen angegeben.
Erstaunlich an diesen Zahlen ist besonders der große Einfluß der $p_{1/2}$ Funktionen bei Z = 164. Das Potential dieses Kernes ist bereits so stark, daß die inneren $p_{1/2}$ Elektronen immer stärker gebunden sind als die zugehörigen s Elektronen (siehe Fig. 2). Dieses anomale Verhalten wird besonders deutlich an den in Fig. 3 gezeigten Wellenfunktionen der L- und M-Schale des Elementes Z = 164. Die $p_{1/2}$ Schale liegt weit getrennt von der $p_{3/2}$ Schale, und das erste Maximum der $2s_{1/2}$ Wellenfunktion ist erstaunlicherweise größer als das sonst größere letzte Maximum derselben Wellenfunktion. Dieses Verhalten wird bei allen Wellenfunktionen beobachtet, die in dieser Gegend ihr erstes Maximum haben, insbesondere bei allen s Funktionen. Damit wird nachträglich der alten Vermutung, daß die innersten Elektronen bei sehr schweren Kernen in den Kern hineingezogen werden, teilweise recht gegeben. Es zeigt sich hier, daß sie zwar nicht in das Kerninnere, aber doch stark in die Nähe des Kernrandes gezogen werden. In Fig. 4 ist die totale Elektronendichte des Elementes Z = 164 aufgetragen, bei der diese anomale Verdichtung bei ca. 40 Fermi stark in Erscheinung tritt. Die Zahl der Elektronen in diesem Maximum beträgt 4.9. Es besteht also zum großen Teil aus den 1s- und den hereingezogenen $2p_{1/2}$ Elektronen. Dazu kommen noch kleine Anteile von allen anderen s- und $p_{1/2}$ Funktionen. Die in Fig. 4 gleichzeitig mit eingetragenen Elektronendichten für Blei und Z = 114 zeigen demgegenüber ein ganz normales Verhalten.

2. Betrachtungen zur Chmie der Elemente

a. Die Actiniden

Bevor die Eigenschaften von Neptunium und Plutonium bekannt waren, wurden die Elemente Actinium, Thorium, Protactinium und Uran mit den Ordnungszahlen Z = 89 bis Z = 92 unter den Elementen Lanthan bis Wolfram in die Gruppen III A bis VI A des periodischen Systems eingeordnet. Ausschlaggebend war das 6-wertige Verhalten von Uran in Fluorverbindungen, das 4-wertige Auftreten von Thorium, während das Actinium nur 3-wertig vorkommt. Erst die Entdeckung und die chemischen Untersuchungen des Americiums und des Curiums durch Seaborg[30] zeigten, daß die Verwandtschaft dieser Elemente untereinander doch größer ist als zu den analogen Elementen der Übergangselemente (siehe auch Zitat 31). Es stellte sich heraus, daß bei den Actiniden die 5f Elektronenschale aufgefüllt wird; analog zu den Lanthaniden, bei denen die 4f Unterschale gefüllt wird. Es ist aber bekannt, daß das chemisch ähnliche Verhalten der Seltenen Erden untereinander viel stärker ausgeprägt ist als bei den Actiniden. Die beherrschende Oxydationsstufe der Lanthaniden ist die 3-wertige Form, die nur ganz am Anfang durch die 4-wertige, in der Mitte bei halbvoller Schale (bei Europium) durch die 2-wertige und am Ende der Lanthaniden ebenfalls durch die 2-wertige Form ergänzt wird. Dieses Verhalten erklärt sich aus der geringen Bindungsenergie der zwei 6s Elektronen und der leichten Abspaltbarkeit eines weiteren 5d Elektrons, das immer aus den vorhandenen 4f Elektronen bei der Bildung des Ions entsteht. Dazu kommt am Beginn der Seltenen Erden noch ein vorgezogenes 5d Elektron, so daß dort eine 4-wertige St ufe entstehen kann. Die halbvolle Schale (da die Hundsche Regel gilt, werden alle Unterzustände einfach und mit parallelem Spin besetzt) und die volle Schale sind durch ihre Kugelsymmetrie schwer angreifbar, so daß die zwar auch kugelsymmetrische 6s Schale durch ihre aber weit nach außen reichende Wellenfunktion allein chemisch aktiv ist. Die gleichen Überlegungen gelten in noch

größerem Maße für die Actiniden. Zwar findet man auch hier die 3-Wertigkeit bei allen Elementen, doch sind die Abweichungen hier größer. In Tabelle 4 sind die bei den Actiniden vorkommenden Oxydationsstufen aufgetragen.
Noch deutlicher zeichnet sich hier der Trend ab, am Anfang der Schale hohe Oxydationsstufen zu bilden und gegen Ende der Schale die niedrigeren Oxydationsstufen zu bevorzugen. Starke Oxydationsmittel, wie z.B. Fluor oder Sauerstoff, erreichen jedoch noch höhere Oxydationsstufen. Die bei den Lanthaniden noch ausgeprägt stabile halbvolle Schale, die bei Europium eine 2-wertige Form entstehen ließ, macht sich beim analogen Element der Actiniden, dem Americium, nicht mehr in der gleichen Weise bemerkbar. Zu Beginn der Actiniden stehen die 5f und 6d Elektronen in Konkurrenz zueinander; so beginnen die Actiniden mit dem Einbau von zwei 6d Elektronen, die erst bei Plutonium vollständig von den 5f Elektronen wieder verdrängt sind. Nur bei Curium macht sich die halbvolle 5f Schale durch den Einbau eines 6d Elektrons statt eines weiteren 5f Elektrons schwach bemerkbar. Da es sehr schwierig ist, experimentell die Elektronenkonfiguration des neutralen Atoms zu bestimmen, treten in der Literatur verschiedentlich noch Differenzen auf. In Tabelle 5 sind die totalen Energien für die in Frage kommenden Konfigurationen nach der HFS-Rechnung angegeben; dazu die sichersten Bestimmungen der experimentellen Konfiguration[33]. Diese Tabelle zeigt, daß die HFS-Rechnung die Elektronenkonfigurationen fast richtig wiedergibt. Sogar der Auf- und Wiederabbau der 6d Elektronen am Anfang der Actiniden wird bis auf den Unterschied, daß in der Natur im Neptunium noch ein 6d Elektron eingebaut ist, richtig beschrieben. Die Differenz in den totalen Energien von 0.04 Ry ist allerdings sehr klein. Der zweite Unterschied gegenüber der Natur tritt nach der halbgefüllten 5f Schale auf. Es zeigt sich, daß es energetisch doch günstiger ist, ein 6d Elektron statt eines 5f Elektrons einzubauen, denn letzteres

benötigt bei der Paarung mit einem anderen 5f Elektron Energie.

Für die theoretische Voraussage der Wertigkeiten der Elemente ist die Ionisationsenergie, die Differenz zwischen der totalen Bindungsenergie des Atoms und des Ions, eine geeignete Größe. Allerdings muß die freie Energie der Hydratation bzw. des Kristallgitters für das spezielle Ion zusätzlich bekannt sein, denn erst die Differenz beider Größen ist das tatsächliche Oxydationspotential; es ist also quantitativ von der Theorie her nur sehr ungenau zugänglich. Rein qualitativ spielt dabei auch die Größe des Atoms oder Ions und die radiale Verteilung der Wellenfunktionen der Valenzelektronen eine Rolle. Gerade bei den Lanthaniden und Actiniden ist dieser Einfluß deutlich zu sehen.
In Fig. 5a und 5b sind die Hauptmaxima der äußersten Elektronen des ersten und letzten Elementes der Lanthaniden bzw. der Actiniden eingetragen. Die 4f Wellenfunktion verändert ihre Lage im Atom beim Einbau der f Elektronen weniger als die 5f Elektronen, was in der größeren Ähnlichkeit der Lanthaniden untereinander auch deutlich zum Ausdruck kommt. Außerdem macht sich dies noch in den fast gleich großen Ionisationsenergien bemerkbar. Die Lage der Hauptmaxima der 5f Wellenfunktionen in den Actiniden ändert sich dagegen sehr viel mehr. Daraus resultiert das stärker abweichende Verhalten der Actiniden, so die höheren Oxydationsstufen zu Anfang und die relative Stabilität der 2-wertigen Stufe gegen Ende der Actiniden, die vor kurzem nachgewiesen werden konnte[31,32]. Damit verbunden werden auch die Ionisationsenergien innerhalb der Actiniden stärker anwachsen.
Diese sehr pauschale Betrachtung der ganzen Reihe der Actiniden wird im Einzelfall für jedes Element und jede Verbindung noch modifiziert werden müssen. Dennoch wird das allgemeine Trendverhalten, das aus diesen Überlegungen resultiert, in der Natur bestätigt.

Genaue Ergebnisse der echten Chemie eines jeden Elementes der Transurane finden sich u.a. bei Cunningham[34] und Seaborg[35].

b. Die Elemente Z = 104 - 112

Der Nachweis, daß sich das Element Z = 104 chemisch analog zu Hafnium und Zirkonium verhält[36], ist der erste experimentelle Hinweis dafür, daß sich die Elemente Z = 104 - 112 chemisch so benehmen, wie man es nach einer trivialen Fortsetzung des Periodensystems erwarten würde. Das bedeutet, daß man es hier chemisch mit den Übergangselementen der 7. Periode zu tun hat, die durch den Einbau der zehn 6d Elektronen charakterisiert werden.

Bei der Vorhersage der physikalischen und chemischen Eigenschaften dieser und aller anderen noch unbekannten Überschweren Elemente muß man auf zwei Wegen vorgehen: Erstens ist der Trend innerhalb der bekannten Gruppen und Perioden nach hohen Z hin zu extrapolieren, und zweitens gibt die HFS-Rechnung über einige Größen direkt oder indirekt Auskunft, wobei die Glaubwürdigkeit der Rechenergebnisse durch vergleichende Rechnungen im bekannten Bereich der Elemente geprüft werden muß.

Die Elektronenkonfugurationen : Die Übergangselemente haben die Konfigurationen $(n-1)d^m ns^2$, wobei n die Periode bedeutet und m von 1 bis 10 läuft. Diese Regel wird besonders in der 4. und 5. Periode von einigen Elementen durch vollständigen oder teilweisen Abbau der ns^2 Elektronen durchbrochen. Dies Verhalten kommt daher, daß es manchmal günstiger ist, die vorangehenden s Elektronen zugunsten der d Elektronen zu ersetzen. So wird z.B. beim Chrom die halbe Schale mit der Konfiguration $3d^5 4s^1$ bevorzugt oder beim Paladium die volle Schale, so daß $4d^{10} 5s^0$ entsteht.

Ein Merkmal, das die Elemente der 4. und 5. Periode von denen der

6. Periode unterscheidet,ist, daß hinter Lanthan die 14 Elemente der Seltenen Erden eingeschoben werden. In Bezug auf die Elektronenkonfiguration macht sich das dadurch bemerkbar, daß die $6s^2$ Elektronen, die jetzt bereits seit 16 Elementen fest eingebaut sind, stärker gebunden sind als die entsprechenden s Elektronen der vorangehenden Perioden. Hinzu kommt, daß die s Elektronen mit hoher Hauptquantenzahl sehr tief in die Elektronenwolke eintauchen und sich in der Nähe des Kernes in einem tiefen Potential bewegen. Deshalb sind diese Elektronen fester gebunden. Aus diesen beiden Gründen besitzen alle Elemente der Übergangselemente der 6. Periode bis zum Indium die volle $6s^2$ Schale. Nur Platin und Gold ziehen ein weiteres 5d Elektron vor. Dieses Verhalten sollte das HFS-Programm berechnen können. In Tabelle 6 sind deshalb die totalen Energien für Ir, Pt und Au für verschiedene Konfigurationen angegeben. Man sieht, daß die HFS-Rechnung genau das beobachtete Verhalten reproduziert.

Bei den Elementen Z = 104 - 112 erwartet man, daß die 7s Schale noch stärker gebunden sein wird als die 6s Schale in der 6. Periode. Es ist deshalb anzunehmen, daß die Elektronenkonfiguration dieser Periode ohne Abweichnungen nach der oben angegebenen Regel $(n-1)d^m ns^2$ sein wird. Die dazu berechneten Werte sind in Tabelle 7 zusammengefaßt. Diese Rechnung unterstützt, ebenso wie die Rechnung in Los Alamos[37)], die Annahme, daß die Auffüllung der 6d Schale einheitlicher vor sich geht als in allen Perioden davor. In Fig. 6 sind die Bindungsenergien der äußeren d und s Elektronen für die Übergangselemente Z = 104 - 112 und zum Vergleich die Bindungsenergien für die Elemente Z = 72 - 80 (und Z = 156 - 164) eingetragen. Die Tendenz dieser Kurve ist eindeutig: Die s Elektronen werden immer stärker gebunden, dagegen werden die d Elektronen immer schwächer gebunden und spalten stärker in ihre Unterschalen auf.
Aus der einheitlichen Auffüllung heraus erwartet man auch ein gradliniges Verhalten der Ionisationsenergien der Übergangselemente.

Diese sind in Fig. 7 aufgetragen und zeigen für die 4. und 5. Periode ein relativ unsystematisches, nur leicht ansteigendes Verhalten, was hauptsächlich durch den wenig systematischen Einbau der Valenzelektronen bestimmt ist. In der 6. Periode ist die Kurve jedoch bereits sehr einfach zu erklären: Der Abfall von La zu Hf resultiert aus dem dazwischen erfolgenden Einbau der Lanthaniden. Die Unterbrechnung zwischen Wolfram und Rhenium kommt daher, daß die Spin-Bahnkopplung sich hier bereits bemerkbar macht. Nach der $5d^4_{3/2}$ Unterschale wird in Rhenium die $5d_{5/2}$ Schale begonnen, und die Elemente Platin und Gold unterbrechen das lineare Verhalten durch das Vorziehen eines d Elektrons. Da dieses Vorziehen der d Elektronen bei Z = 110 und Z = 111 nicht mehr erwartet wird, wird auch die Kurve der Ionisationsenergie dieser Elemente gradlinig verlaufen. Sie wird nur noch unterbrochen von dem Knick, der den Beginn der $6d_{5/2}$ Schale markiert. Die berechneten Kurven sind ebenfalls in Fig. 7 eingetragen.

Der Zusammenhang zwischen der Ionisationsenergie, den Oxydationsstufen und dem Atom- oder Ionenradius ist bei den Actiniden bereits diskutiert worden. Dort zeigt es sich, daß wegen der weit innen liegenden 5f Schale, die die Struktur am Rande relativ unverändert läßt, ein einfacher Zusammenhang besteht, der bei den Übergangselementen nur noch sehr bedingt gilt. Dies hat verschiedene Gründe. Zunächst hat die Definition eines Atomradius praktisch überhaupt keinen Sinn, denn bei einem gasförmigen Atom reichen die Wellenfunktionen sehr weit, und die Frage, bei welcher Elektronendichte der Radius anzusetzen ist, ist Definitionssache. Daher sind auch alle Angaben über Atomradien nur mit Vorsicht zu behandeln. Dagegen ist die Angabe eines Radius bei Verbindungen eine realistische Größe. Doch auch hier muß man unterscheiden zwischen Ionenradius (in ionischen Verbindungen), Kovalentradius (bei kovalenten Verbindungen) und einem Metallradius, die darüber hinaus noch von der Art der

Verbindungen und der Kristallstruktur abhängen. Hinzu kommt, daß die Valenzelektronen Winkelabhängigkeiten besitzen, so daß sich in den verschiedenen Richtungen unterschiedliche Radien ergeben können. Daraus resultieren Begriffe wie Tetraeder- und Oktaederradius. Als allgemeine Merkregel kann nur festgehalten werden, daß sich die Radien innerhalb einer Gruppe, also bei analoger Elektronenkonfiguration, mit steigendem Z vergrößern und innerhalb einer Periode mit zunehmend gefüllter Schale verkleinern. Diese allgemeine Verkleinerung beträgt für den Kovalentradius in der 4. und 5. Periode 0.044 Å pro Ladung und in der 6. Periode etwa 0.03 Å[38]. Die Ionisationsenergie innerhalb einer Periode wird dabei in dem Maße größer, wie die in Frage kommende Wellenfunktion das hinzukommende Elektron durch eine ausgeschmierte Verteilung nicht selbst stark abschirmt. Dies ist bei den f Elektronen extrem der Fall, so daß dort die Ionisationsenergien fast gleich groß sind. Auf die d Elektronen trifft dies nicht mehr ganz so stark zu. Außerdem nimmt die Steigung der Ionisationsenergiekurve von Periode zu Periode zu, was daher rührt, daß die hohen d Funktionen mit ihrem ersten Maximum weit in die Elektronenwolke hineinreichen.

Das stetige Verhalten der Ionen- und Tetraederradien folgt genau den oben angegebenen Regeln. Betrachtet man sich dagegen den Metallradius der d Elemente in Fig. 8[38], so sieht man zu Beginn eine sehr starke Verkleinerung des Radius und gegen Ende eine Vergrößerung. Das ist hauptsächlich darin begründet, daß die Bereitschaft, Elektronen an das Metallgitter abzugeben, am Anfang sehr stark zunimmt und der Radius deshalb kleiner wird. Diese Bereitschaft nimmt gegen Ende hin sehr stark ab, und der Radius geht in der Mitte der p Elemente wieder stetig in den Kovalentradius über. Pauling[38] hat gezeigt, daß der Radius um so kleiner wird, je größer der d Charakter der metallischen Bindung ist. Dieses Verhalten kommt am Beginn der Übergangselemente durch die besonders starke Verkleinerung des Metallradius deutlich zum Ausdruck.

Der Trend des Radius, von einer Periode zur nächsten größer zu werden, wird beim Übergang von der 5. zur 6. Periode dadurch aufgehalten, daß diese Expansion von der Lanthanidenkontraktion kompensiert wird. Da jedoch die Anzahl und Reihenfolge der Elemente Z = 104 - 112 analog zur 6. Periode ist und die Actinidenkontraktion nicht so groß ist, wie die der Lanthaniden[31)], kann man annehmen, daß die Radien wieder etwas ansteigen werden. Aus vergleichenden Betrachtungen der Hauptmaxima der äußeren Elektronen in der 5., 6. und 7. Periode darf man ein mittleres Ansteigen des Metallradius um ca. 0.1 Å erwarten. Bedingt durch die kleinere Ionisationsenergie am Beginn der 6d Schale dürfte der Wert etwas kleiner sein, dagegen am Ende etwas größer. Die Atomradien der Elemente werden sich dagegen kaum oder nur minimal vergrößern, da die 7s Funktion einen kleineren Radius als die entsprechende 6s Funktion hat.

Die auffällig große Ionisationsenergie der Elemente der 6. Periode bestätigt, daß ihr chemisches Verhalten hauptsächlich durch eine relative Inaktivität gekennzeichnet ist; daher auch der Name Edelmetalle für Os bis Hg. Bei der Betrachtung der möglichen Oxydationsstufen spielt hauptsächlich der Kovalentradius und damit die Geometrie der Verbindung eine Rolle. Da die Elemente der 5. und 6. Periode fast gleich groß sind, sind auch ihre Verbindungen und häufigsten Oxydationsstufen sehr ähnlich. Die Wertigkeiten der 4., 5. und 6. Periode sind in Tabelle 8 eingetragen. Die am Schluß der 6. Periode auftretenden höheren Oxydationsstufen kommen durch die große energetische Trennung der $6d_{3/2}$ und $6d_{5/2}$ Unterschale und der damit verbundenen Aufhebung der Kugelsymmetrie der vollen d Schale zustande. Diese Elemente sind dadurch chemisch etwas leichter angreifbar. In der HFS-Rechnung ist diese Aufhebung der Kugelsymmetrie zwar nicht explizit enthalten, jedoch muß eine energetische und örtliche Aufspaltung der zwei Unterschalen in dieser Weise interpretiert werden.

Extrapoliert man alle diese Überlegungen auf die Übergangselemente Z = 104 - 112, so kommt man zu folgendem Ergebnis: Bedingt durch die wahrscheinlich etwas größeren Kovalentradien und die am Beginn relativ niedrigen Ionisationsenergien, darf man den Trend, die größtmögliche Oxydationsstufe zu erreichen, am Anfang der Serie als relativ sicher ansehen. Die hohen Wertigkeiten in der Mitte dürften ebenfalls noch leichter zu erreichen sein. Die charakteristische Stabilität der vollen d Schale geht in dieser Periode noch mehr zurück. Das liegt nicht nur daran, daß die vergleichbaren äußeren Valenzelektronen der s Schale von Periode zu Periode stärker gebunden werden, sondern auch daran, daß die d Schale selbst energetisch aufgespalten ist. Die hohen Ionisationsenergien zum Ende der Schale zeigen, daß sich diese Elemente als gute Edelmetalle erweisen werden, deren chemisch dominante Form das Metall sein wird. Wenn diese Elemente jedoch echte Verbindungen eingehen, so werden aus den eben genannten Gründen voraussichtlich die hohen Oxydationsstufen leichter erreicht werden.

In Tabelle 9 sind die Ergebnisse für die Elemente Z = 104 - 112 zusammengestellt. Nur diejenigen physikalisch-chemischen Größen sind tabelliert, die direkt oder indirekt mit den Rechnungen zusammenhängen. Daher sind alle Größen, wie Schmelzpunkt, Siedepunkt, Debyetemperatur, Sublimationswärme, Schmelzwärme, etc., die bisher nur aus der Extrapolation der bekannten Elemente gewonnen werden können, nicht aufgenommen worden. Bei der Angabe der Dichte ist die gleiche Kristallstruktur wie bei dem Element, das im Periodensystem darüber steht, angenommen worden. Extrapolationen anderer Autoren für das Element Z = 104 führen zu ähnlichen Ergebnissen[32)].

c. Die Elemente Z = 113 - 120

Da für die Umgebung des Elementes mit der Ladungszahl 114 die erste stabile Insel der Superschweren Kerne mit Lebensdauern bis zu vielen Jahren oder Jahrtausenden vorausgesagt wird[3], ist die Chemie dieser Elemente von großem Interesse. Das gilt besonders auch deshalb, weil es denkbar ist, daß diese Elemente nicht nur künstlich hergestellt werden können, sondern eventuell in kleinsten Mengen auch in der Natur zu finden sind.
Nachdem bei den Elementen bis Z = 112 die 6d Schale beendet worden ist, wird in den folgenden 6 Elementen bis Z = 118 die 7p Schale aufgefüllt. Die Elektronenstruktur der Atome ergibt sich nach der HFS-Rechnung in gleicher Weise, wie es die triviale Fortsetzung des Periodensystems fordert. Für die einzelnen Elektronenkonfigurationen ergeben sich die totalen Energien, die in Tabelle 11 aufgetragen sind.

Die Auffüllung erfolgt also ganz analog zu allen p Elementen der vorangegangenen Perioden[37]. In Fig. 9 sind die Bindungsenergien der äußersten Elektronen für die p Elemente der 6. und 7. Periode eingetragen. Die Ähnlichkeit zwischen den Ergebnissen der Rechnungen in den beiden Gebieten zeigt, daß die Struktur der Valenzelektronen noch die gleiche ist, daß aber die analogen s Elektronen von Periode zu Periode immer stärker gebunden werden. Diese festere Bindung liegt darin begründet, daß die Elektronen durch ihre große Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe des Kernes sich in immer größeren Potentialtiefen bewegen. Die 7p Schale ist schon sehr viel stärker aufgespalten als die analoge 6p Schale. Die damit verbundene schwache Aufhebung der Kugelsymmetrie macht sich sehr wahrscheinlich durch leichtere chemische Angreifbarkeit bemerkbar. Dieses Verhalten spiegelt sich auch in den Ionisationsenergien wieder. Fig. 10 zeigt die experimentellen Ionisationsenergien der p Elektronenatome der 2. bis zur 6. Periode und die berechneten Werte für die 6. und 7.

Periode. Das Trendverhalten ist ziemlich klar und einfach. Innerhalb einer Periode nimmt die Ionisationsenergie sehr zu und geht über die starken Oxydationsmittel der Halogene bis zu den chemisch inaktiven Edelgasen. Der Knick zwischen den Konfigurationen p^3 und p^4 kommt von der halb besetzten p Schale, in der sich die drei Elektronen auf die p_x, p_y und p_z Orbitale mit parallelem Spin verteilen. Dadurch ist die Dichteverteilung der halbvollen Schale kugelsymmetrisch und stabil. Dieser in den ersten Perioden sehr stark ausgeprägte Effekt nimmt langsam ab und erscheint in der 5. Periode nur mehr sehr schwach. In der 6. Periode ist der Knick zwischen den Konfigurationen p^3 und p^4 bereits verschwunden; statt dessen tritt aber ein Knick zwischen den Konfigurationen p^2 und p^3 auf, der durch die immer stärker werdende Spin-Bahnkopplung und der damit verbundenen Aufteilung der p Schale auf die $p_{1/2}$ und $p_{3/2}$ Unterschale entsteht. Diese Unterteilung wird, dies zeigt die Berechnung der Ionisationsenergien, im Bereich Z = 113 - 118 noch stärker. Dadurch wird für Z = 114 die Ionisationsenergie fast ebenso groß wie für das bei Z = 118 erwartete Edelgas. Die experimentelle und die gerechnete Kurve für die 6. Periode verlaufen genau parallel, nur liegt der Absolutwert der berechneten Kurve um ca. 0.8 eV unter der experimentellen Kurve. Diese Differenz hat ihre Ursache darin, daß die Berechnung der p Wellenfunktion nicht so genau ist, weil sie direkt an der Oberfläche des Atoms liegt und damit in den Bereich der 1/r Approximation des Potentials kommt, der dort beginnt, wo die nach außen integrierte Elektronendichte unter den Betrag von einer Ladung absinkt. Da der Fall für die Elemente Z = 113 - 118 analog ist, darf man die berechneten Werte um 0.8 eV vergrößern, um zu den realen Werten zu kommen. In gleicher Weise erhält man die Ionisationsenergien der 6d Elektronen der Elemente Z = 104 - 112. Da die 6d Wellenfunktion jedoch bereits zum größten Teil innerhalb der Elektronenwolke liegt, sind die Werte genauer und der Korrekturfaktor ist nur 0.2 eV. Andere Autoren[40)]

haben diese Korrekturfaktoren, das heißt die Differenzen zwischen Experiment und Rechnung, für alle Perioden (allerdings nur innerhalb einer Gruppe) bestimmt, die Korrekturfaktoren selbst nach oben extrapoliert und einen Wert von 0.72 eV für Z = 114 gefunden. Da die Ungenauigkeiten der Rechnung aber in der Größenordnung von 0.1 eV liegen, genügt ein gemeinsamer Faktor für alle Elemente einer Schale.

Aus den gleichen Gründen sind auch die Radien, die man für die Elemente von Z = 113 - 118 angeben kann, nur innerhalb großer Fehlergrenzen zu verstehen. Bei den letzten Elementen vor den Edelgasen nimmt der Metallcharakter sehr stark ab, das heißt die Valenzelektronen sind wieder stärker lokalisiert,und der Radius folgt daher wieder mehr der normalen Kontraktion mit zunehmendem Z. Das hat zur Folge, daß der Metall- bzw. Kovalentradius der p Elemente in Fig. 8 bei etwa der Konfiguration p^3 ein Maximum hat. Hier ist der Metallcharakter der Bindung fast völlig verschwunden. Genau wie bei den d Elementen ist die Extrapolation des Metall- bzw. Kovalentradius in der Weise durchgeführt worden, daß die Lagen der Hauptmaxima der äußeren Wellenfunktionen miteinander verglichen wurden.

Die Oxydationsstufen der Elemente Z = 113 - 118 dürften weitgehend dem Trend der Gruppensystematik III B bis VIII B folgen, die vergleichsweise einheitlich für die höheren Elemente die niedrigeren Oxydationsstufen bevorzugen. Dieses Verhalten ist der Tatsache zuzuschreiben, daß die s Elektronen durch ihre von Periode zu Periode zunehmende Bindungsenergie immer weniger zur Valenz beitragen und die chemische Aktivität immer mehr auf die weiter außen befindlichen p Elektronen übertragen wird. In der Gruppe III B ist die 3-wertige Stufe alleine vertreten, bis auf Tl, das bereits hauptsächlich 1-wertig ist. Aus den oben genannten Gründen dürfte das Element Z = 113 rein 1-wertig sein. Ebenso nimmt von Si bis Pb

die Häufigkeit der 4-wertigen Stufe zugunsten der 2-wertigen stark ab. Da die 4-Wertigkeit in diesem Fall durch eine sp^3 Hybridisierung zustande kommt, die s Elektronen jedoch relativ stark gebunden sind und außerdem der Spin der Elektronen sehr stark an ihren Drehimpuls gekoppelt ist, wird entgegen der Hundschen Regel bereits vor Erreichen der halbvollen Schale der für den Bahndrehimpuls antiparallele Spin eingebaut. Deshalb ist eine sp^3 Hybridisierung im alten Sinne nicht mehr möglich. Daraus folgt eine eindeutig vorherrschende 2-Wertigkeit des Elementes Z = 114. Zum gleichen Ergebnis kommen Keller et. al.[40], die für den Trend zur niedrigeren Wertigkeit zusätzlich das Argument bringen, daß die gegenseitige Abstoßung der beiden Partner durch die inneren Elektronen bei größer werdendem Z zunimmt. Diesem Argument ist allerdings nicht zuzustimmen, denn von außen sehen die Atome, abgesehen von der Größe und der Valenzelektronenstruktur, fast gleich aus. Die Tatsache, daß durch die etwas größeren Atome der Überlapp der Wellenfunktionen bei kovalenter Bindung etwas geringer ist, ist dagegen richtig.

Da bei Z = 115 die $7p_{3/2}$ Unterschale begonnen wird und die $7p_{1/2}$ Schale bereits mehr als doppelt so stark gebunden ist, werden die Elemente Z = 115, 116 und 117 hauptsächlich 1-, 2- bzw. 3-wertig sein. Hinzu kommt bei starken Oxydationsmitteln noch die um 2 höherwertige Stufe. Da für Z = 118 ein "Edelgas" erwartet wird, tritt bei Z = 117 möglicherweise auch die (-1)-wertige Stufe auf. Das "Edelgas" bei Z = 118 dürfte seine Rolle als Edelgas im Sinne von He und Ne noch mehr verloren haben als schon Xe und Rn. Die Extrapolation sagt einen Siedepunkt von -15°C voraus[41], so daß man fast mit einer "Edelflüssigkeit" rechnen muß. Außerdem wird das Element voraussichtlich 4- oder 6-wertige kovalente Verbindungen eingehen, die aus dem "Edelgas" ein durchaus normales chemisches Element werden lassen.

Die Elemente Z = 119 und Z = 120 beginnen mit dem Einbau der beiden 8s Elektronen, die genauso locker gebunden sind, wie schon die 6s Elektronen bei Cs und Ba oder gar bei Fr und Ra. Dieses Verhalten

weist sie eindeutig als 1- bzw. 2-wertig aus, wie es in der Gruppe I A und II A durchgängig üblich ist. Eine eventuell höhere Oxydationsstufe dürfte wohl kaum vorkommen. In Fig. 11 sind die Ionisationsenergien der beiden Gruppen gezeigt. Die Tendenz ist die, daß sowohl die absoluten Werte als auch die Steigung der Kurve mit größer werdender Periode abnehmen. Bei Z = 119 und Z = 120 allerdings nehmen die Absolutwerte wieder geringfügig zu, um dann in der 9. Periode noch größer zu werden. Beides spiegelt den Effekt des starken Feldes in der Nähe des Kernes wieder, das auch die weit außen liegenden s Elektronen noch verhältnismäßig stark bindet. Dieses Verhalten drückt sich auch darin aus, daß der Radius des Maximums der Wellenfunktion wieder etwas kleiner wird; daher wird der Atomradius kaum größer sein als bei Fr und Ra.
In Tabelle 10 sind die physikalisch-chemischen Größen zusammengestellt, die direkt oder indirekt aus den Rechnungen für die Elemente Z = 113 bis Z = 120 erschlossen werden können. Grosse[41)] und Cunningham[42)] extrapolieren die Eigenschaften der Elemente Z = 117 - 120 nur aus dem Trendverhalten der analogen Elemente der gleichen Gruppen. Für die beiden Elemente Z = 113 und Z = 114 gibt es von Keller et. al.[40)] gute Extrapolationen, die auf den Rechnungen von Waber et. al.[17)] basieren und mit unseren Ergebnissen im wesentlichen übereinstimmen.

d. Die Elemente Z = 121 - 155

Die Super-Actiniden Serie

Die Fortsetzung der magischen Schalen der Kerne nach hohen Protonenzahlen hin ließ ziemlich früh die Vermutung aufkommen, daß als Analogie zur magischen Neutronenzahl 126 diese Zahl ebenfalls bei den Protonen auftritt. Daher waren die allerersten Überlegungen der theoretischen Chemiker auf die Umgebung des Elementes Z = 126 gerichtet. Daraus resultieren eine ganze Reihe von Arbeiten, die sich

mit der Vorhersage der Chemie der Elemente dieser Gegend befassen[18,22,43-45]. Es zeigte sich aber bald, daß man gerade hier in ein Gebiet gestoßen war, in dem eindeutige Aussagen über die Elektronenkonfigurationen fast unmöglich sind, da vier verschiedene Elektronenschalen, die $7d_{3/2}$, $8p_{1/2}$, $6f_{5/2}$ und die $5g_{7/2}$, energetisch fast gleichberechtigt sind. Die chemische Interpretation der Ergebnisse fällt noch schwerer, da es eine Chemie mit g Elektronen bis jetzt noch nicht gibt und Analogieschlüsse in dieses Gebiet hinein sehr viel ungenauer sind. Trotzdem kann man die Erfahrungen, die man von den Lanthaniden und Actiniden her hat, verwenden. Vor dem Einbau der 4f Schale in den Lanthaniden wird ein 5d Elektron und vor der 5f Schale werden sogar zwei 6d Elektronen vorgezogen, die dann während des Aufbaus wieder zugunsten der f Elektronen verloren gehen. Trotzdem zeigen sie das durchgehend 3-wertige Verhalten dieser Elemente an.

Die Rechnungen[43-45),22)] für Z = 121 wiedersprechen sich. Einige Autoren[22),43)] berechnen, daß ein 7d Elektron vorgezogen wird. In der Rechnung von Mann[45)] und in unserer Rechnung wird ein $8p_{1/2}$ Elektron vorgezogen. Allerdings sind die Unterschiede in den totalen Energien nur sehr gering, so daß eine eindeutige Aussage nicht möglich ist.

In Tabelle 12 sind die neuesten Ergebnisse von Mann und Waber[45)] für die stabilsten Konfigurationen im Bereich der Super-Actiniden angegeben. Diese Rechnungen sind jedoch rein akademisch, weil man mit ziemlicher Sicherheit annehmen kann, daß die zugehörigen Kerne völlig instabil sind[3)] und damit die Existenz dieser Elemente unmöglich ist. Diese Konfigurationen sind auch in das Periodensystem in Fig. 1 übernommen worden.

Die sehr geringe Bindungsenergie am Beginn dieser Super-Actinidenelemente macht es wahrscheinlich, daß in chemischen Verbindungen sämtliche in Tabelle 12 angeführten Elektronen abgespalten werden können. Daraus folgt, daß bei Z = 126 die 8-Wertigkeit sehr leicht

erreicht werden kann, zumal da Schalen mit allen möglichen Drehimpulsen von 0 bis 4 energetisch so nahe beieinander liegen, daß jede gewünschte Hybridisierung erfolgen kann. Für die danach folgenden Elemente ist eine noch höhere Oxydationsstufe wahrscheinlich keine energetische Frage, sondern mehr eine Frage der Geometrie, wie die vielen Valenzelektronen alle untergebracht werden sollen. Ab Z = 125 beginnt sich die 5g Schale durchzusetzen, die sich danach auch fast stetig auffüllt, allerdings ohne die vorgezogenen Elektronen ganz verdrängen zu können. Besonders gilt dies für die $8p_{1/2}$ Elektronen, die aus dem gleichen Grunde wie die hohen s Elektronen bei hohem Z vergleichsweise fest gebunden sind. Wenn bei Z = 144 die 5g Schale voll ist, übernimmt die 6f Schale die Führung, die bei Z = 154 ebenfalls gefüllt ist.

Da am Anfang bereits zwei $8p_{1/2}$ Elektronen vorgezogen werden, die am Ende der Serie so fest gebunden sind, daß sie zur Chemie dort nicht mehr beitragen, wird die Super-Actiniden Serie 18 + 14 + 2 Elemente lang. Die Elemente Lanthan und Actinium werden durch ihre vorgezogenen d Elektronen selbst nicht zu den Lanthaniden bzw. den Actiniden gerechnet. Da beim Element Z = 121 völlig unsystematisch ein 8p Elektron eingebaut wird und eine Zusammengehörigkeit mit den Übergangselementen ab Z = 156 nur sehr schwer konstruiert werden kann, rechnen wir dieses Element ebenfalls zu den Super-Actiniden. Damit reicht die Serie von Z = 121 bis Z = 155.

Eine durchgehende Oxydationsstufe, wie in den Lanthaniden (aber auch noch in den Actiniden) dürfte es in dieser Serie nicht mehr geben. Die vorherrschende 8-Wertigkeit bei Z = 126 dürfte zugunsten einer 6-Wertigkeit im Bereich bis Z = 132 zurücktreten, der dann bis ca. Z = 144 eine 3- bis 4-Wertigkeit folgen wird. Bis zum Ende der Serie bei Z = 155 wird die 2- und 3-Wertigkeit vorherrschen, weil die 6f Schale schon tief innerhalb der Elektronenwolke liegt. Die 8s und $8p_{1/2}$ Elektronen sind bereits seit ca. Z = 140 wegen der großen

Bindungsenergie chemisch nicht mehr aktiv und tragen deshalb nicht mehr zur Bindung bei.
Bei den Lanthaniden und Actiniden wird durch den Einbau der f Elektronen in das Innere der Elektronenwolke der Durchmesser der Atome über die 14 Elemente hinweg sehr stark verkleinert. Dieser, Lanthanidenkontraktion genannte Effekt, wiederholt sich bei den Actiniden allerdings etwas weniger stark, da die weiter außen liegenden Elektronenschalen etwas diffuser sind als bei den Lanthaniden. In Fig. 5a und 5b sind die Maxima der äußersten Wellenfunktionen des ersten und letzten Elementes der Lanthaniden und Actiniden aufgetragen. In Fig. 5c ist die analoge Information für die Elemente Z = 121 und Z = 155 wiedergegeben. Da bei den Super-Actiniden 32 Elektronen in das Innere der Elektronenwolke eingebaut werden, ist mit einer großen Kontraktion zu rechnen. Sie wird jedoch nicht erreicht, da der Radius der Elemente am Ende der Serie von den äußersten chemisch inaktiven $7p_{1/2}$ und $8s_{1/2}$ Schalen bestimmt wird. Diese Elektronenstruktur bedeutet für die danach kommenden d Elemente, daß der Radius sowohl im Metall als auch in allen anderen Verbindungen nur nach der normalen Periodenkontraktion verkleinert wird.

e. Die Elemente Z = 156 - 172

Die neuesten sehr detaillierten Rechnungen von Grumann u.a.[3] lassen es als sicher erscheinen, daß um die magische Protonenzahl bei Z = 164 eine große stabile Insel liegen wird, in der die Lebensdauern der Kerne viele Jahre, vielleicht sogar Jahrtausende sein sollten. Die Ausläufer der Insel reichen vom Element Z = 155 bis ca. Z = 170, so daß die Kenntnis der Chemie dieser Elemente besonders interessant ist. Das prinzipielle Interesse erstreckt sich auch auf die Bindungsenergien der inneren Schalen, da hier zum ersten Male experimentelle Informationen aus einem Bereich zu erhalten sein werden, in dem $Z\alpha$, der

Entwicklungsparameter der elektromagnetischen Wechselwirkung, nicht mehr klein ist und alle quantenelektrodynamischen Effekte groß sein werden (siehe dazu die Diskussion in Teil II, Abschnitt 1).

In Tabelle 13 sind die totalen Energien der stabilsten Elektronenkonfigurationen für den Bereich Z = 156 bis Z = 172 zusammengestellt (Es sind alleine in diesem Bereich 112 Konfigurationen durchgerechnet worden). Es ergibt sich, daß die jeweils energetisch günstigsten Konfigurationen sehr nahe beieinander liegen und deshalb nicht ohne weiteres entschieden werden kann, welche tatsächlich die stabilste ist. Andererseits zeigt der Vergleich eines Elementes mit dem darauf folgenden, daß die energetische Reihenfolge innerhalb der Elemente vollkommen analog zueinander ist. Durch diese Systematik wird es glaubhaft, daß die Rechnungen auch in diesem Bereich richtige Aussagen liefern.
Daraus ist zu schließen, daß bis zum Element Z = 164 einschließlich die 7d Schale aufgefüllt wird und damit die formale Fortsetzung der d Übergangselemente entsteht. Da die $8p_{1/2}$ Schale bereits sehr früh begonnen ist, erwartet man ab Z = 165 die Auffüllung der $8p_{3/2}$ Unterschale. Tabelle 13 zeigt jedoch, daß sowohl die $9s_{1/2}$ als auch die $9p_{1/2}$ Schale vorgezogen werden. Dieses überraschende Ergebnis versetzt uns in die Lage, noch eine halbwegs vernünftige Fortsetzung des Periodensystems anzugeben, denn plötzlich haben wir wieder sechs einzelne p Elektronen, die energetisch fast gleichberechtigt sind und damit eine p Schale auffüllen, wie sie ähnlich nur in der zweiten und dritten Periode vorkommt.

Für die Chemie der Elemente bis Z = 164 wichtigste Tatsache ist, daß die $8s_{1/2}$ und die $8p_{1/2}$ Schale so fest gebunden sind, daß sie an der Chemie nicht mehr teilnehmen, ganz im Gegensatz zu allen Übergangs- und p Elementen vorher, bei denen die Valenz und das Hybridisierungsverhalten im wesentlichen von der am Anfang der Periode begonnenen s Schale mitbestimmt worden sind. Daher werden

alle Elemente ab Z = 156 eine Wertigkeit haben, die um 2 kleiner ist als in den Perioden zuvor. Der zunehmende Edelmetallcharakter der Übergangselemente von Periode zu Periode und innerhalb einer Periode macht sich auch hier bemerkbar. Man kann sagen, daß die häufigste Form, in der man die Elemente am Ende der Übergangsserie antreffen wird, die metallische sein wird und Verbindungen in der üblichen Form fast genauso wenig vorkommen werden wie bei Os, Ir und Pt. Die Tendenz, daß diese Elemente chemisch vielleicht wieder etwas stärker aktiv werden, zeigt Fig. 6, in welcher die große Aufspaltung der 7d Schale und die geringe Bindungsenergie der $7d_{5/2}$ Schale deutlich sichtbar wird. Zugleich ist aus Fig. 7 zu ersehen, daß die Ionisationsenergien dieser Elemente im ganzen etwas kleiner sind, was ebenfalls wieder durch diese Aufspaltung zu erklären ist. Dagegen ist die Ionisationsenergie am Ende der Schale bei Z = 164 fast ebenso groß wie in den Perioden vorher.
Die Lage der Hauptmaxima der äußersten Wellenfunktionen der Elemente Z = 82, Z = 114 und Z = 164 sind in Fig. 12 aufgetragen. Die 7d Schale ist bei Z = 164 die äußerste Schale und damit liegt genau der Fall vor, der sonst nur bei den Edelgasen vorkommt, daß nämlich die am schwächsten gebundenen Elektronen eine außen liegende, aber abgeschlossene Schale bilden, deren Ionisationsenergie groß ist. Daher darf man für Z = 164 annehmen, daß es sich wie ein "Edelgas" in diesem Gebiet verhält oder etwas anders ausgedrückt: Das Element Z = 164 zeigt eindeutig Edelmetallcharakter[7].

Damit wird eine weitere allgemeine Veränderung im Periodensystem sichtbar. Beim Helium ist es die $1s^2$ Schale, die das Edelgas bildet. Diese Rolle wird bei den nächsten Edelgasen von der vollen p Schale übernommen. Dabei sinkt ihre Ionisationsenergie von Periode zu Periode, während die Ionisationsenergie der vollen d Schale von Periode zu Periode größer wird, bis diese bei Z = 164 als ihrem letzten Element den Periodenabschluß übernimmt.

Für die Analogie dieses Elementes mit den Edelgasen vorher ist entscheidend, daß die volle kugelsymmetrische d Schale die äußerste ist (siehe Fig. 12), so daß es nichts ausmacht, daß die Ionisationsenergie für Z = 164 wieder etwas gegenüber dem darüber liegenden Element abgenommen hat. Die Aufspaltung der 7d Schale ist nicht größer als die der 7p Schale beim letzten Edelgas bei Z = 118. Die Periode ist damit vorzeitig zu Ende und die neue 9. Periode beginnt in der üblichen Weise mit den Elementen der Gruppen I A und II A, in denen die zwei 9s Elektronen eingebaut werden. Ihre Ionisationsenergien sind wieder etwas größer als in den Perioden vorher und erreichen fast die Werte der 3. Periode (siehe Fig. 11). Trotzdem können diese Elektronen wegen ihres großen Abstandes vom Kern sehr leicht abgetrennt werden, so daß je ein typisches Alkali- und Erdalkalimetall mit den Wertigkeiten 1 bzw. 2 entstehen.

Ab Z = 167 wird die $9p_{1/2}$ Schale der $8p_{3/2}$ Schale vorgezogen. Aber auch wenn die Reihenfolge der beiden Schalen andersherum sein sollte, erhält man durch diese zufällige Folge des Einbaus sechs p Elektronen. Sie haben zwar verschiedene Hauptquantenzahlen, sind aber energetisch nah benachbart. Die Analogie zur p Schale der frühen Perioden wird noch dadurch vergrößert, daß,wie in der zweiten und dritten Periode, auf die gerade begonnene s Schale die p Schale folgt. Die Energieeigenwerte dieser Elemente sind in Fig. 9 mit den Werten der p Elektronen der 6. und 7. Periode verglichen. Der geringe energetische Unterschiedder $9p_{1/2}$ und der $8p_{1/2}$ Elektronen deutet auf eine gut ausgebildete abgeschlossene p Schale hin. Zum anderen zeigen jedoch die niedrigen Energieeigenwerte, daß man für die Elemente Z = 167 - 172 maximale Wertigkeiten annehmen darf. Für das Element Z = 167 folgt die Wertigkeit 3, für das Element Z = 168 die Wertigkeit 4, für das Element Z = 169 die Wertigkeit 5 und für das Element Z = 170 die Wertigkeit 6. Für Z = 171 dürften wahrscheinlich alle Wertigkeiten von 1-7 vorkommen, je nach der Stärke der Reaktionspartner. Das

Element Z = 172 schließlich dürfte durch die Besonderheit einer "abgeschlossenen" Schale, bestehend aus zwei Sorten von p Elektronen, ein "Edelgas" bilden. Die Ionisationsenergie dieser p Elemente (siehe Fig. 10) liegt sehr gut zwischen den Werten der 5. und 6. Periode, so daß als Abschluß das "Edelgas" in etwa die gleichen Eigenschaften wie Xenon besitzen wird. Der große Unterschied wird jedoch darin bestehen, daß es aufgrund des hohen Atomgewichtes bereits fest sein dürfte.

Zum Schluß sind in Tabelle 13 die wichtigsten physikalischen und chemischen Größen der Elemente Z = 156 bis Z = 172 zusammengestellt. Bei der Angabe der Metallradien wurden die Hauptmaxima der Wellenfunktionen der Elemente ab Z= 156 mit den entsprechenden Elementen in der 6. Periode verglichen. Da die 8s und $8p_{1/2}$ Wellenfunktionen einen relativ großen undurchdringlichen Abschluß der Ionen nach außen hin bilden, werden sich die Metallradien nicht entsprechend schnell verkleinern. Diese Zusammenhänge sind in Fig. 8 dargestellt. Die Angabe eines Radius und mehr noch die Angabe einer Dichte ist nur als erste Orientierung innerhalb großer Fehlergrenzen anzusehen.

III Zusammenfassung und Ausblick

Bei der Herstellung der Transurane hat sich gezeigt, daß es möglich ist, das chemische Verhalten einzelner Atome zu bestimmen. Wenn im Laufe der nächsten Jahre an Schwerionenbeschleunigern Kerne in den Inseln der Stabilität bei Z = 114 oder gar bei Z = 164 hergestellt werden, eröffnet sich die Möglichkeit, diese Kerne chemisch nachzuweisen oder doch zumindest die Chemie dieser Elemente zu untersuchen.

In dieser Arbeit werden bis zum Element Z = 172 mit Hilfe einer Hartree-Fock-Slater Rechnung und durch Extrapolation der Eigenschaften der bekannten Elemente Voraussagen über einige wichtige chemisch-physikalische Größen gemacht, wie zum Beispiel Wertigkeit, Ionisationsenergie und Metallradius. Für die Fortsetzung des Periodischen Systems der Elemente bis Z = 172 ist in Fig. 1 ein Vorschlag angegeben. Bis zum Edelgas bei Z = 118 ist die Analogie zum bekannten Teil des Periodensystems vollständig. Ab Z = 104 beginnen die Übergangselemente, denen die p Elemente der siebenten Periode folgen. Für das Element Z = 114 erwartet man ein bleiähnliches Verhalten, nur mit dem Unterschied, daß im Gegensatz zu Blei die zweiwertige Form alleine auftreten wird.

Zwei Effekte bestimmen für hohe Kernladungen in zunehmendem Maße die Chemie der Überschweren Elemente. Einmal wird die Bindungsenergie der s Valenzelektronen von Periode zu Periode größer und gleicht den Charakter der chemischen Gruppen I B und II B immer mehr der VIII. Gruppe an, und zweitens wird die energetische Aufspaltung der äußersten Elektronenschalen in Zustände mit gutem Gesamtdrehimpuls immer größer. Dadurch wird der abgeschlossene Charakter einer vollen kugelsymmetrischen p oder d Schale immer mehr aufgelöst. Das Edelgas bei Z = 118 wird deshalb ein fast normales chemisches Element sein. Nach den Alkali- und Erdalkalimetallen bei

Z = 119 und Z = 120 beginnen die sogenannten Super-Actiniden, bei denen am Anfang vier Elektronenniveaus energetisch nah benachbart sind. Ihr chemischer Charakter ist völlig offen und deshalb hochinteressant, weil sich hier wahrscheinlich bisher noch nicht bekannte Oxydationsstufen und Hybridisierungsformen erreichen lassen. Von Z = 156 bis Z = 164 folgt die Serie der d Elemente. Die $8s^2$ und die in den Super-Actiniden bereits vorgezogenen $8p^2_{1/2}$ Elektronen haben hier Bindungsenergien erreicht, die sie chemisch inaktiv werden lassen, so daß am Ende der d Elemente mit guten Edelmetallen gerechnet werden kann. Bei Z = 164 wird die achte Periode beendet, was zusätzlich ein Hinweis auf den "Edel-Charakter" dieses Elementes ist. Bei Z = 165 und Z = 166 folgen ein Alkali- und ein Erdalkalimetall. Da gleich darauf die energetisch fast gleichwertigen $9p_{1/2}$ und $8p_{3/2}$ Schalen aufgefüllt werden, ist damit wieder eine vollständige p Schale vorhanden, die ebenso wie in der zweiten und dritten Periode der gefüllten s Schale folgt. Durch diesen Zufall, daß hier sechs p Elektronen mit zwei verschiedenen Hauptquantenzahlen energetisch so nahe beieinander liegen, erwartet man bei Z = 172 ein Edelgas, das sich in den chemischen Eigenschaften sehr gut mit Xenon vergleichen läßt.

In der HFS-Rechnung wird angenommen, daß die Einteilchen-Diracgleichung auch die innersten Elektronenzustände richtig beschreibt. Da die quantenelektrodynamischen Effekte für hohe Kernladungszahlen voraussichtlich groß sein werden, kann diese Annahme jedoch nur eine nullte Näherung darstellen, so daß auch die Angaben über die Energien der Röntgenlinien und die Anzahl der Elektronen im Kern für Z = 164 nur eine ungefähre Abschätzung nach oben sein dürften. Da diese Korrekturen von prinzipiellem Interesse sind, ist die Beobachtung der Übergangsenergien der innersten Schalen von sehr großer Wichtigkeit.

Aber auch die Chemie der Überschweren Elemente kann sich durch

diese Korrekturen noch etwas ändern. So wird bei Z = 121 wahrscheinlich doch zuerst ein 7d Elektron statt eines $8p_{1/2}$ Elektrons eingebaut werden. Die Bindung der $8s^2$ und $8p^2_{1/2}$ Elektronen im Bereich um Z = 156 wird noch nicht so fest sein, daß sie noch teilweise an der Valenz werden teilnehmen können. Dagegen wird die Umkehrung der Auffüllung der $9p_{1/2}$ und $8p_{3/2}$ Elektronenschalen keine Veränderung in der Chemie zur Folge haben.

Um diese Fragen genauer untersuchen zu können, ist es notwendig, eine Hartree-Fock Rechnung durchzuführen, in der das Vakuum exakt berücksichtigt wird; so wie es Reinhard[5)] vor kurzem begonnen hat.

Literaturverzeichnis

1) Fink, B. und U. Mosel in: Memorandum der Kernphysikalischen Arbeitsgemeinschaft Hessen (1966)

2) Nilsson, S.G., J.R. Nix, A. Sobiczewski, Z. Szymanski, S. Wyceck, C. Gustafson und P. Möller Nucl. Phys. A115, 545 (1968)

3) Mosel, U. Doktorarbeit Inst. f. Theor. Physik Frankfurt/Main (1968)
Mosel, U. und W. Greiner Z. Physik 222, 261 (1969)
Grumann, J., U. Mosel, B. Fink und W. Greiner Z. Physik 228, 371 (1969)

4) Pieper, W. und W. Greiner Z. Physik 218, 327 (1969)

5) Greiner, W. private Mitteilung
Reinhard, P.G. erscheint demnächst in Lett. al Nuovo Cimento

6) Flerov, G.N. und V.P. Perelygin Atomnaya Energiya 26, 52 (1969)

7) Fricke, B. und W. Greiner Phys. Lett. 30B, 317 (1969)

8) siehe u.a. Hartree, D.R. Proc. Cambr. Phil. Soc. 24, 89 (1928)
Fock, V. Z. Physik 61, 126 (1930)
Dirac, P.A.M. Proc. Cambr. Phil. Soc. 26, 376 (1930)

9) Slater, J.C. Phys. Rev. 81, 385 (1951)

10) Gaspar, R. Acta Phys. Acad. Sci. Hung. 3, 263 (1954)
Kohn, W. und L.J. Sham Phys. Rev. 140, A1133 (1965)
Cowan, R.D., A.C. Larson, D. Liberman, J.B. Mann und J.T. Waber Phys. Rev. 144, 5 (1966)

11) Payne, H. Phys. Rev. 157, 515 (1967)
Liberman, D. Phys. Rev. 171, 1 (1968)
Herman, F., J.P. van Dyke und I.B. Ortenburger Phys. Rev. Lett. 22, 807 (1969)

12) Lindgren, I. Phys. Lett. 19, 382 (1965) ; Arkiv Fysik 31, 59 (1966)

13) Rosén, A. und I. Lindgren Phys. Rev. 176, 114 (1968)

14) Latter, R. Phys. Rev. 99, 510 (1955)

15) Cohen, S. Phys. Rev. 118, 489 (1960)

16) Herman, F. und S. Skillman "Atomic Structure Calculations" (Prentice Hall, Inc. Englewood Cliffs, N. J. 1963)

17) Waber, J. T., D. Cromer und D. Liberman wird veröffentlicht in J. Chem. Phys.

18) Liberman, D., J. T. Waber und D. T. Cromer Phys. Rev. 137, A27 (1965)
Snow, E. C., J. Canfield und J. T. Waber Phys. Rev. 135, A969 (1964)

19) Nestor, C. W., T. C. Tucker, T. A. Carlson, L. D. Roberts, F. B. Malik und C. Froese ORNL - Report No. 4027 (1966)
Tucker, T. C., L. D. Roberts, C. W. Nestor, T. A. Carlson und F. B. Malik Phys. Rev. 174, 118 (1968) ; 178, 998 (1969)

20) Mann, J. B. "Atomic Structure Calculations I. Hartree-Fock Energy Results for the Elements H to Lw" Los Alamos Sci. Lab. Rept. LA-3690 (1967)

21) Larson, A. C. und J. T. Waber "Self Consistent Hartree Calculations for Atoms and Ions" Los Alamos Sci. Lab. Rept. LA - DC - 8508 (1967)

22) Griffin, D. C., K. L. Andrew und R. D. Cowan Phys. Rev. 177, 62 (1969)

23) Fink, B. und U. Mosel private Mitteilung

24) Gombás, P. "Die Statistische Theorie des Atoms" Wien, Springer Verlag 1949

25) Rein, D. Z. Physik 221, 423 (1969)

26) Pomeranitschuk, J. und J. Smorodinsky J. Phys. USSR 9, 97 (1945)

27) Brown, G.E. und D.F. Mayers Proc. Roy. Soc. A251, 105 (1959)

28) Breit, G. Phys. Rev. 34, 553 (1929) ; 36, 383 (1930) ; 39, 616 (1932)

29) Morovic, T. Diplomarbeit Inst. f. Theor. Phys. Frankfurt (1969)

30) Seaborg, G.T., R.A. James, L.O. Morgan und A. Ghiorso 1944 in Chicago veröffentlicht in Chemical and Engeneering News Vol. 24, 1192 (1946)

31) Eine ausführliche Zusammenfassung ist gegeben in: Seaborg, G.T. Annual Rev. Nucl. Sci. 18, (1968)

32) Maly, J., T. Sikkeland, R.J. Silva und A. Ghiorso Science 160, 144 (1968)
Maly, J. und B.B. Cunningham Inorg. Nucl. Chem. Lett. 3, 445 (1967)

33) Heslop, R.B. und P.L. Robinson "Inorganic Chemistry" (Elsevier Publ. Comp. London, New York 1963 2. edition)

34) Cunningham, B.B. Annual Rev. Nucl. Sci. 14, 323 (1964)

35) Seaborg, G.T. "Manmade Transuranium Elements" (Prentice Hall Inc. Englewood Cliffs, N.J. 1964)

36) Zvara, I., Y.T. Chuburkov, R. Tsaletka, T.S. Zvarova, M.R. Shalevsky und B.V. Shilov Sov. J. Atom. Energy 21, 709 (1966)

37) Waber, J.T., D.T. Cromer und D. Liberman wird veröffentlicht in J. Chem. Phys.

38) Pauling, L. "The Nature of the Chemical Bond" (deutsch im Verlag Chemie GmbH Weinheim 1968 3. Auflage)

39) Keller, C.L. und J.L. Burnett Oak Ridge Nat. Lab. vorgetragen von G.T. Seaborg auf dem Mendeleev Centennial Symposium in Minneapolis, Minesota (April 1969)

40) Keller, C.L. und J.L. Burnett wird veröffentlicht in J. Chem. Phys.

41) Grosse, V.A. J. Inorg. Chem. 27, 509 (1965)

42) Cunningham, B.B. Zitat 140 in Referenz 31

43) Larson, A.C. und J.T. Waber J. Chem. Phys. 48, 5021 (1968)

44) Cowan, R.D. und D.C. Griffin erscheint demnächst in Phys. Rev.

45) Mann, J.B. und J.T. Waber "Zur Chemie der Elemente Z = 121 - 134" wird veröffentlicht
Mann, J.B. private Mitteilung

Beschreibung der Tabellen

Tabelle 1: Die Lage einiger Röntgenlinien für das Element Z = 164 nach der HFS-Rechnung. Da die quantenelektrodynamischen Korrekturen nicht bekannt sind, stellen diese Werte eine obere Grenze dar.

Tabelle 2: Die Energieeigenwerte der 1s und $2p_{1/2}$ Elektronen für die Elemente Z = 114 und Z = 164 mit verschiedenen Kernparametern c und t der Fermiladungsverteilung.

Tabelle 3: Die Zahl der Elektronen im Kern für die Elemente Blei, Uran, Z = 114 und Z = 164 und ihre Aufteilung nach den verschiedenen Unterschalen.

Tabelle 4: Die Oxydationsstufen der Actiniden. Die stabilsten Wertigkeiten sind mit einem Kreis versehen.

Tabelle 5: Die berechneten totalen Energien der Actiniden für verschiedene Elektronenkonfigurationen und der Vergleich mit der in der Natur beobachteten Elektronenstruktur der neutralen Atome.

Tabelle 6: Die für verschiedene Elektronenkonfigurationen der Elemente Iridium, Platin und Gold berechneten totalen Energien und der Vergleich mit der beobachteten Struktur der neutralen Atome.

Tabelle 7: Die totalen Energien für verschiedene Elektronenkonfigurationen der Elemente Z = 104 - 112.

Tabelle 8: Die Wertigkeiten der Übergangselemente der 4. bis zur 6. Periode. Die häufigsten Wertigkeiten sind mit einem Kreis versehen.

Tabelle 9: Die chemisch-physikalischen Größen der Elemente Z = 104 - 112, die man direkt oder indirekt aus den Rechnungen erhält. Bei der Angabe der Dichte ist die gleiche Kristallstruktur wie bei den Elementen Hafnium bis Quecksilber angenommen worden.

Tabelle 10 : Die chemisch-physikalischen Größen der Elemente Z = 113 - 120. Die Radien wurden aus einem Vergleich der Maxima der äußersten Wellenfunktionen mit den analogen Elementen gewonnen.

Tabelle 11 : Die totalen Energien für verschiedene Elektronenkonfigurationen der Elemente Z = 113 - 120.

Tabelle 12 : Die stabilsten Elektronenkonfigurationen der Super-Actinidenelemente Z = 121 - 155 nach den Rechnungen von Mann und Waber[45].

Tabelle 13 : Die totalen Energien der stabilsten Elektronenkonfigurationen der Elemente Z = 156 - 172.

Tabelle 14 : Die chemischen und physikalischen Eigenschaften der Elemente Z = 156 - 172. Die Elemente in die chemischen Gruppen einzuteilen, ist nur noch teilweise möglich. Die Angaben in dieser Tabelle stimmen mit der Stellung im Periodensystem (Fig. 1) nicht überein, da die Elemente hier nach chemischen, dort nach systematischen Gesichtspunkten eingeordnet sind. Die größten Unsicherheiten liegen bei der Angabe der Radien und Dichten, die nur als erste Orientierung zu verstehen sind.

Tabelle 1

	Übergang	E (keV)
Z = 164	$2p_{1/2} - 1s_{1/2}$	420.1
	$2p_{3/2} - 1s_{1/2}$	679.1
	$3d_{3/2} - 2p_{1/2}$	305.7
	$3d_{5/2} - 2p_{3/2}$	49.3

Tabelle 2

	c (fm)	t (fm)	E_{1s} (keV)	$E_{2p_{1/2}}$ (keV)
Z = 114	6.0	2.64	201.06	40.22
	7.0	3.08	200.74	40.20
	8.0	3.52	200.42	40.19
	8.1	2.50	200.51	40.19
	8.1	3.56	200.39	40.19
	9.0	3.95	200.10	40.17

	c (fm)	t(fm)	E_{1s} (keV)	$E_{2p_{1/2}}$ (keV)
Z = 164	8.0	3.52	783.65	355.00
	9.0	3.95	753.99	331.73
	9.35	2.50	759.16	335.6o
	9.35	4.11	744.83	324.69
	10.0	4.39	729.18	312.81
	11.0	4.83	707.98	297.07

Tabelle 3

Element	total	$1s_{1/2}$	$2s_{1/2}$	$2p_{1/2}$	$2p_{3/2}$	$3s_{1/2}$	$3p_{1/2}$
Blei	$1.86\ 10^{-5}$	$7.66\ 10^{-6}$	$1.18\ 10^{-6}$	$9.47\ 10^{-8}$	$1.93\ 10^{-12}$	$2.73\ 10^{-7}$	$2.46\ 10^{-8}$
Uran	$5.27\ 10^{-5}$	$2.11\ 10^{-5}$	$3.59\ 10^{-6}$	$3.98\ 10^{-7}$	$7.17\ 10^{-12}$	$8.54\ 10^{-7}$	$1.07\ 10^{-7}$
Z = 114	$4.21\ 10^{-4}$	$1.55\ 10^{-4}$	$3.40\ 10^{-5}$	$8.03\ 10^{-6}$	$6.52\ 10^{-11}$	$8.39\ 10^{-6}$	$2.20\ 10^{-6}$
Z = 164	$5.42\ 10^{-2}$	$1.24\ 10^{-2}$	$3.06\ 10^{-3}$	$9.23\ 10^{-3}$	$6.41\ 10^{-9}$	$7.04\ 10^{-4}$	$1.01\ 10^{-3}$

Tabelle 4

Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lw
						2			2	2	2	2	2	
3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4				
		5	5	5	5	5								
			6	6	6									
				7										

Tabelle 5

Element	Elektronenkonfiguration	$-E_T$ (Ry)	beobachtete Konfiguration
$_{89}Ac$	$5f^1\ 7s^2$	51497.447	
	$6d^1\ 7s^2$	51497.643	$6d^1\ 7s^2$
$_{90}Th$	$5f^2\ 7s^2$	52994.072	
	$5f^1\ 6d^1\ 7s^2$	52994.204	
	$6d^2\ 7s^2$	52994.247	$6d^2\ 7s^2$
$_{91}Pa$	$5f^3\ 7s^2$	54520.874	
	$5f^1\ 6d^2\ 7s^2$	54520.902	
	$5f^2\ 6d^1\ 7s^2$	54520.946	$5f^2\ 6d^1\ 7s^2$
$_{92}U$	$5f^2\ 6d^2\ 7s^2$	56077.247	
	$5f^4\ 7s^2$	56077.360	
	$5f^3\ 6d^1\ 7s^2$	56077.375	$5f^3\ 6d^1\ 7s^2$
$_{93}Np$	$5f^3\ 6d^2\ 7s^2$	57665.126	
	$5f^4\ 6d^1\ 7s^2$	57665.327	$5f^4\ 6d^1\ 7s^2$
	$5f^5\ 7s^2$	57665.369	
$_{94}Pu$	$5f^4\ 6d^2\ 7s^2$	59283.974	
	$5f^5\ 6d^1\ 7s^2$	59284.249	
	$5f^6\ 7s^2$	59284.352	$5f^6\ 7s^2$
$_{95}Am$	$5f^5\ 6d^2\ 7s^2$	60935.216	
	$5f^6\ 6d^1\ 7s^2$	60935.562	
	$5f^7\ 7s^2$	60935.641	$5f^7\ 7s^2$
$_{96}Cm$	$5f^6\ 6d^2\ 7s^2$	62617.762	
	$5f^7\ 6d^1\ 7s^2$	62618.078	$5f^7\ 6d^1\ 7s^2$
	$5f^8\ 7s^2$	62618.211	
$_{97}Bk$	$5f^7\ 6d^2\ 7s^2$	64334.602	
	$5f^8\ 6d^1\ 7s^2$	64334.981	
	$5f^9\ 7s^2$	64335.161	$5f^9\ 7s^2$
$_{98}Cf$	$5f^8\ 6d^2\ 7s^2$	66086.846	
	$5f^9\ 6d^1\ 7s^2$	66087.284	
	$5f^{10}\ 7s^2$	66087.517	$5f^{10}\ 7s^2$
$_{99}Es$	$5f^9\ 6d^2\ 7s^2$	67872.847	
	$5f^{10}\ 6d^1\ 7s^2$	67873.345	
	$5f^{11}\ 7s^2$	67873.621	$5f^{11}\ 7s^2$
$_{100}Fm$	$5f^{10}\ 6d^2\ 7s^2$	69694.149	
	$5f^{11}\ 6d^1\ 7s^2$	69694.704	
	$5f^{12}\ 7s^2$	69695.027	$5f^{12}\ 7s^2$
$_{101}Md$	$5f^{11}\ 6d^2\ 7s^2$	71551.283	
	$5f^{12}\ 6d^1\ 7s^2$	71551.896	
	$5f^{13}\ 7s^2$	71552.261	$5f^{13}\ 7s^2$
$_{102}No$	$5f^{12}\ 6d^2\ 7s^2$	73442.397	
	$5f^{13}\ 6d^1\ 7s^2$	73443.066	
	$5f^{14}\ 7s^2$	73443.480	$5f^{14}\ 7s^2$
$_{103}Lw$	$5f^{14}\ 6d^1\ 7s^2$	75374.726	$5f^{14}\ 6d^1\ 7s^2$

Tabelle 6

Element	Elektronenkonfiguration (plus Xe Rumpf)	$-E_T$ (Ry)	beobachtete Konfiguration
$_{77}Ir$	$5d^9\ 6s^0$	35672.783	
	$5d^8\ 6s^1$	35672.875	
	$5d^7\ 6s^2$	35672.910	$5d^7\ 6s^2$
$_{78}Pt$	$5d^{10}\ 6s^0$	36847.478	
	$5d^8\ 6s^2$	36847.522	
	$5d^9\ 6s^1$	36847.533	$5d^9\ 6s^1$
$_{79}Au$	$5d^9\ 6s^2$	38048.395	
	$5d^{10}\ 6s^1$	38048.451	$5d^{10}\ 6s^1$

Tabelle 7

Element	Elektronenkonfiguration (plus Rn Rumpf + $5f^{14}$)	$-E_T$ (Ry)	erwartete Konfiguration
Z = 104	$6d^3\ 7s^1$	77343.974	
	$6d^2\ 7s^2$	77344.221	$6d^2\ 7s^2$
Z = 105	$6d^4\ 7s^1$	79352.600	
	$6d^3\ 7s^2$	79352.827	$6d^3\ 7s^2$
Z = 106	$6d^5\ 7s^1$	81401.167	
	$6d^4\ 7s^2$	81401.455	$6d^4\ 7s^2$
Z = 107	$6d^6\ 7s^1$	83490.694	
	$6d^5\ 7s^2$	83490.975	$6d^5\ 7s^2$
Z = 108	$6d^7\ 7s^1$	85622.194	
	$6d^6\ 7s^2$	85622.465	$6d^6\ 7s^2$
Z = 109	$6d^9\ 7s^0$	87796.593	
	$6d^8\ 7s^1$	87796.858	
	$6d^7\ 7s^2$	87797.103	$6d^7\ 7s^2$
Z = 110	$6d^{10}\ 7s^0$	90015.309	
	$6d^8\ 7s^1\ 7p^1$	90015.552	
	$6d^9\ 7s^1$	90015.560	
	$6d^8\ 7s^2$	90015.788	$6d^8\ 7s^2$
Z = 111	$6d^8\ 7s^2\ 8s^1$	92279.281	
	$6d^8\ 7s^2\ 7p^1$	92279.532	
	$6d^{10}\ 7s^1$	92279.611	
	$6d^9\ 7s^2$	92279.821	$6d^9\ 7s^2$
Z = 112	$6d^9\ 7s^2\ 7p^1$	94590.086	
	$6d^{10}\ 7s^2$	94590.421	$6d^{10}\ 7s^2$

Tabelle 8

4. Periode	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn
									1	
			2	2	(2)	2	(2)	(2)	(2)	(2)
	(3)	3	3	(3)	3	(3)	3	3		
		(4)	4		4					
			(5)							
				6	6					
					7					

5. Periode	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Rn	Rh	Pd	Ag	Cd
									(1)	
				2		2	2	(2)		(2)
	(3)		3	3		(3)	3			
		(4)		4		(4)	(4)	4		
			(5)	5						
				(6)		6				
					(7)					
						8				

6. Periode	La	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg
									1	1
				2	2	2	2	2		(2)
	(3)			3		3	(3)		(3)	
		(4)		4	4	(4)	(4)	(4)		
			(5)	5						
				(6)	6	6	6			
					(7)					
						8				

Tabelle 9

Element	104	105	106	107	108	109	110	111	112
Atomgewicht	278	281	283	286	289	292	295	298	301
chemische Gruppe	IV A	V A	VI A	VII A	VIII	VIII	VIII	I B	II B
Valenzelektronenstruktur	$7s^2\ 6d^2$	$7s^2\ 6d^3$	$7s^2\ 6d^4$	$7s^2\ 6d^5$	$7s^2\ 6d^6$	$7s^2\ 6d^7$	$7s^2\ 6d^8$	$7s^2\ 6d^9$	$7s^2\ 6d^{10}$
häufigste Oxydationsstufen	+ 4	+ 5	+ 6,4	+ 7,6,5	+ 8,6,4	+ 6,4	+ 4,6	+ 3,5	+ 2,4
Ionisationspotential (eV)	5.1	6.2	7.1	6.5	7.4	8.2	9.4	10.3	11.1
Metallradius (A)	1.66	1.53	1.47	1.45	1.43	1.44	1.46	1.52	1.60
Dichte (g/cm^3)	17.0	21.6	23.2	27.2	28.6	28.2	27.4	24.4	16.8

Tabelle 10

Element	113	114	115	116	117	118	119	120
Atomgewicht	304	307	310	313	316	319	322	325
chemische Gruppe	III B	IV B	V B	VI B	VII B	0	I A	II A
Valenzelektronenstruktur	$7s^2\ 7p^1$	$7s^2\ 7p^2$	$7s^2\ 7p^3$	$7s^2\ 7p^4$	$7s^2\ 7p^5$	$7s^2\ 7p^6$	$8s^1$	$8s^2$
häufigste Oxydationsstufen	+ 1	+ 2	+ 3,1	+ 2,4	+1,3,-1	0,4	+ 1	+ 2
Ionisationspotential (eV)	7.5	8.5	5.9	6.8	8.2	9.0	4.1	5.3
Metallradius (A)	1.69	1.76	1.78	1.77			2.6	2.0
Kovalentradius (A)						2.2		
Dichte (g/cm^3)	14.7	15.1	14.7	13.6			4.6	7.2

Tabelle 11

Element	Elektronenkonfiguration (plus Xe Rumpf + $5f^{14}\ 6d^{10}$)				Totale Energie	erwartete Konfiguration
Z	$7s_{1/2}$	$7p_{1/2}$	$7p_{3/2}$	$8s_{1/2}$	$-E_T$ (Ry)	
113	2	-	-	1	96948.260	
	2	1	-	-	48.552	$7s^2\ 7p^1$
114	2	1	-	1	99355.408	
	2	1	1	-	55.516	
	2	2	-	-	55.771	$7s^2\ 7p^2$
115	2	2	-	1	101813.125	
	2	2	1	-	13.256	$7s^2\ 7p^3$
116	2	2	-	2	104322.218	
	2	2	1	1	22.487	
	2	2	2	-	22.678	$7s^2\ 7p^4$
117	2	2	1	2	106885.091	
	2	2	2	1	85.429	
	2	2	3	-	85.708	$7s^2\ 7p^5$
118	2	2	2	2	109503.051	
	2	2	3	1	03.447	
	2	2	4	-	03.757	$7s^2\ 7p^6$
119	2	2	3	2	112178.331	
	2	2	4	1	78.788	$7s^2\ 7p^6\ 8s^1$
120	2	2	4	2	114912.660	$7s^2\ 7p^6\ 8s^2$

Tabelle 12

Element	Elektronenkonfiguration (nach Mann und Waber[45]) (plus Z = 118 Rumpf)						
Z	$8s_{1/2}$	$8p_{1/2}$	$5g_{7/2}$	$5g_{9/2}$	$6f_{5/2}$	$6f_{7/2}$	$7d_{3/2}$
121	2	1	-	-	-	-	-
122	2	1	-	-	-	-	1
123	2	1	-	-	1	-	1
124	2	1	-	-	3	-	-
125	2	1	1	-	3	-	-
126	2	2	2	-	2	-	-
127	2	2	3	-	2	-	-
128	2	2	4	-	2	-	-
130	2	2	6	-	2	-	-
132	2	2	8	-	2	-	-
134	2	2	8	-	4	-	-
136	2	2	8	2	4	-	-
138	2	2	8	4	3	-	1
140	2	2	8	6	3	-	1
141	2	2	8	7	2	-	2
142	2	2	8	8	2	-	2
144	2	2	8	10	1	-	3
145	2	2	8	10	3	-	2
146	2	2	8	10	4	-	2
149	2	2	8	10	6	-	3
150	2	2	8	10	6	-	4
152	2	2	8	10	6	3	3

Tabelle 13

Element	Elektronenkonfiguration (plus Z - 118 Rumpf + $8s^2\ 5g^{18}\ 6f^{14}$)						Totale Energie	erwartete Konfiguration der Valenzelektronen
Z	$7d_{3/2}$	$7d_{5/2}$	$8p_{1/2}$	$8p_{3/2}$	$9s_{1/2}$	$9p_{1/2}$	$-E_T$ (Ry)	
156	2	-	2	-	-	-	284017.004	$7d^2$
157	4	-	1	-	-	-	291997.609	
	3	-	2	-	-	-	98.863	$7d^3$
158	4	1	1	-	-	-	300238.086	
	4	-	2	-	-	-	39.707	$7d^4$
159	4	2	1	-	-	-	308742.215	
	4	1	2	-	-	-	44.082	$7d^5$
160	4	-	2	-	2	-	317516.054	
	4	1	2	-	1	-	16.132	
	4	2	2	-	-	-	16.136	$7d^6$
161	4	1	2	-	2	-	326559.352	
	4	2	2	-	1	-	59.488	
	4	3	2	-	-	-	59.503	$7d^7$
162	4	3	2	1	-	-	335874.500	
	4	3	2	-	1	-	74.566	
	4	4	2	-	-	-	74.629	$7d^8$
163	4	4	2	1	-	-	345469.540	
	4	4	2	-	1	-	69.617	
	4	5	2	-	-	-	69.711	$7d^9$
164	4	5	2	1	-	-	355344.141	
	4	5	2	-	1	-	44.215	
	4	6	2	-	-	-	44.352	$7d^{10}$
165	4	5	2	-	2	-	365499.725	
	4	6	2	1	-	-	99.839	
	4	6	2	-	1	-	99.922	$9s^1$
166	4	6	2	2	2	-	375938.000	
	4	6	2	1	1	-	38.074	
	4	6	2	-	1	1	38.090	
	4	6	2	-	2	-	38.188	$9s^2$
167	4	6	2	3	-	-	386659.832	
	4	6	2	2	1	-	59.953	$9s^2\ 8p^1_{3/2}$
	4	6	2	1	2	-	60.080	oder
	4	6	2	-	2	1	60.082	$9s^2\ 9p^1_{1/2}$
168	4	6	2	4	-	-	397665.473	
	4	6	2	3	1	-	65.590	
	4	6	2	1	1	2	65.656	
	4	6	2	2	2	-	65.754	
	4	6	2	-	2	2	65.769	$9s^2\ 9p^2_{1/2}$
169	4	6	2	4	1	-	408955.508	
	4	6	2	3	2	-	55.680	
	4	6	2	2	2	1	55.710	
	4	6	2	1	2	2	55.750	$9s^2\ 9p^2_{1/2}\ 8p^1_{3/2}$
170	4	6	2	4	2	-	420529.949	
	4	6	2	3	2	1	30.019	
	4	6	2	2	2	2	30.090	$9s^2\ 9p^2_{1/2}\ 8p^2_{3/2}$
171	4	6	2	3	2	2	432388.285	$9s^2\ 9p^2_{1/2}\ 8p^3_{3/2}$
172	4	6	2	4	2	2	444529.128	$9s^2\ 9p^2_{1/2}\ 8p^4_{3/2}$

Tabelle 14

Element	156	157	158	159	160	161	162	163	164	165	166
Atomgewicht	445	448	452	456	459	463	466	470	474	477	481
chemisch ähnlichste Gruppe		III A	IV A	V A	VI A	VII A	VIII	VIII	0,VIII	I A	II A
Valenzelektronenstruktur	$7d^2$	$7d^3$	$7d^4$	$7d^5$	$7d^6$	$7d^7$	$7d^8$	$7d^9$	$7d^{10}$	$9s^1$	$9s^2$
häufigste Oxydationsstufen	+ 2	+ 3	+ 4	+ 5,1	+ 6,2	+ 7,3	+ 4,8	+ 5	+ 6,0	+ 1	+ 2
Ionisationspotential (eV)	4.1	4.7	5.4	3.5	4.4	4.9	5.8	6.4	7.1	5.4	6.5
Metallradius (A)	1.7	1.63	1.57	1.52	1.48	1.48	1.49	1.52	1.58	2.5	2.0
Dichte (g/cm^3)	26	28	30	33	36	40	45	47	46	7	11

Element	167	168	169	170	171	172
Atomgewicht	485	489	493	496	500	504
chemisch ähnlichste Gruppe	III B	IV B	V B	VI B	VII B	0
Valenzelektronenstruktur	$9s^2\ 9p^1_{1/2}$	$9s^2\ 9p^2_{1/2}$	$9s^2\ 9p^2_{1/2}\ 8p^1_{3/2}$	$9s^2\ 9p^2_{1/2}\ 8p^2_{3/2}$	$9s^2\ 3p^2_{1/2}\ 8p^3_{3/2}$	$9s^2\ 9p^2_{1/2}\ 8p^4_{3/2}$
häufigste Oxydationsstufen	+ 3	+ 4	+ 5	+ 6	+ 7,3	0,4,6,8
Ionisationspotential (eV)	6.4	7.5	8.3	9.2	10.2	11.3
Metall- bzw. Kovalentradius (A)	1.9	1.8	1.75	1.7	1.65	2.2
Dichte (g/cm^3)	17	19	18	17	16	9

Beschreibung der Figuren

Fig. 1 : Das Periodische System der Elemente in der Fortsetzung bis zum Element Z = 172. Die Valenzelektronen sind schematisch eingezeichnet.

Fig. 2 : Die Energieeigenwerte der innersten Schalen aus der Lösung der Diracgleichung mit ausgedehntem Kern von Z = 135 - 175 für das Wasserstoffproblem nach Pieper et. al. [4], für das Thomas-Fermi Potential und von Z = 160 - 170 für das selbstkonsistente Potential.

Fig. 3 : Die im selbstkonsistenten Potential berechneten Elektronenwellenfunktionen der L-Schale und Teile der M-Schale für Z = 164.

Fig. 4 : Die totalen Elektronendichten der Elemente Blei, Z = 114 und Z = 164. Besonders auffällig ist das große erste Maximum bei dem Element Z = 164.

Fig. 5a : Die Lage der Hauptmaxima der äußersten Wellenfunktionen des ersten Elements der Lanthaniden, verglichen mit dem ersten Element nach den Lanthaniden. Fig. 5b : Entsprechender Vergleich für die Actiniden. Fig. 5c : Entsprechender Vergleich für die Super-Actiniden.

Fig. 6 : Die berechneten Energieeigenwerte der äußersten Elektronen der Elemente Z = 72 - 80, Z = 104 - 112 und Z = 156 - 164.

Fig. 7 : Die experimentellen ersten Ionisationsenergien der Übergangselemente der 4. bis 6. Periode und die berechneten Werte der 6. bis 8. Periode.

Fig. 8 : Der Metallradius der Übergangselemente der 4. bis 6. Periode. Dazu sind die Extrapolationen der Metallradien der Übergangselemente der 7. und 8. Periode eingetragen. Die jeweils darauf folgenden p Elemente sind mit eingezeichnet.

Fig. 9 : Die berechneten Energieeigenwerte der Valenzelektronen der Elemente Z = 78 - 88, Z = 113 - 120 und Z = 167 - 172.

Fig. 10 : Die experimentellen und berechneten ersten Ionisationsenergien der p Elemente der 2. bis 9. Periode.

Fig. 11 : Die experimentellen und berechneten ersten Ionisationsenergien der Elemente der Gruppen I A und II A von der 1. bis zur 9. Periode.

Fig. 12 : Die Lage der Hauptmaxima der äußersten Wellenfunktionen der Elemente Blei, Z = 114 und Z = 164. Für Z = 164 ergibt sich, daß die 7d Schale die äußerste ist.

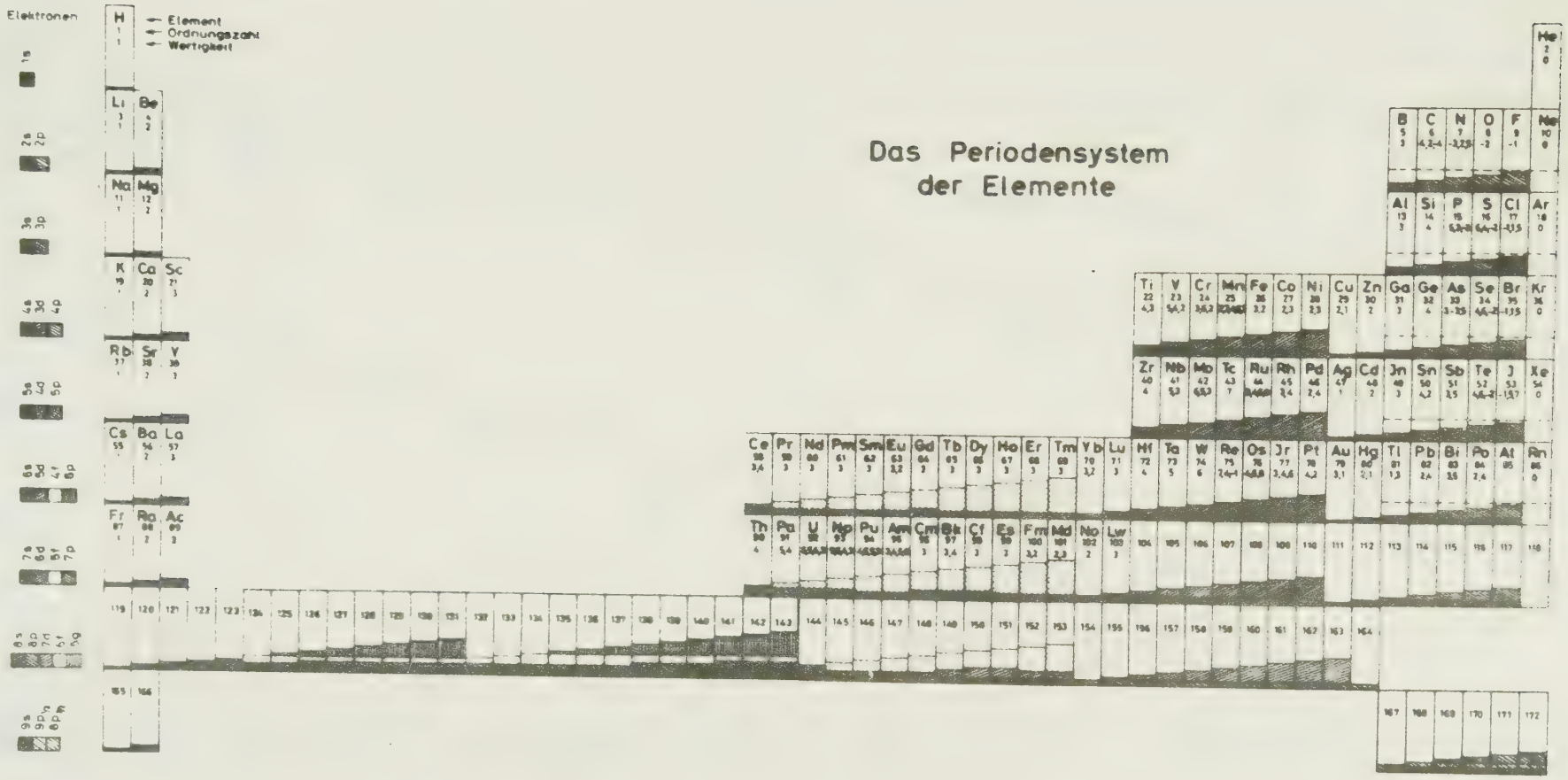
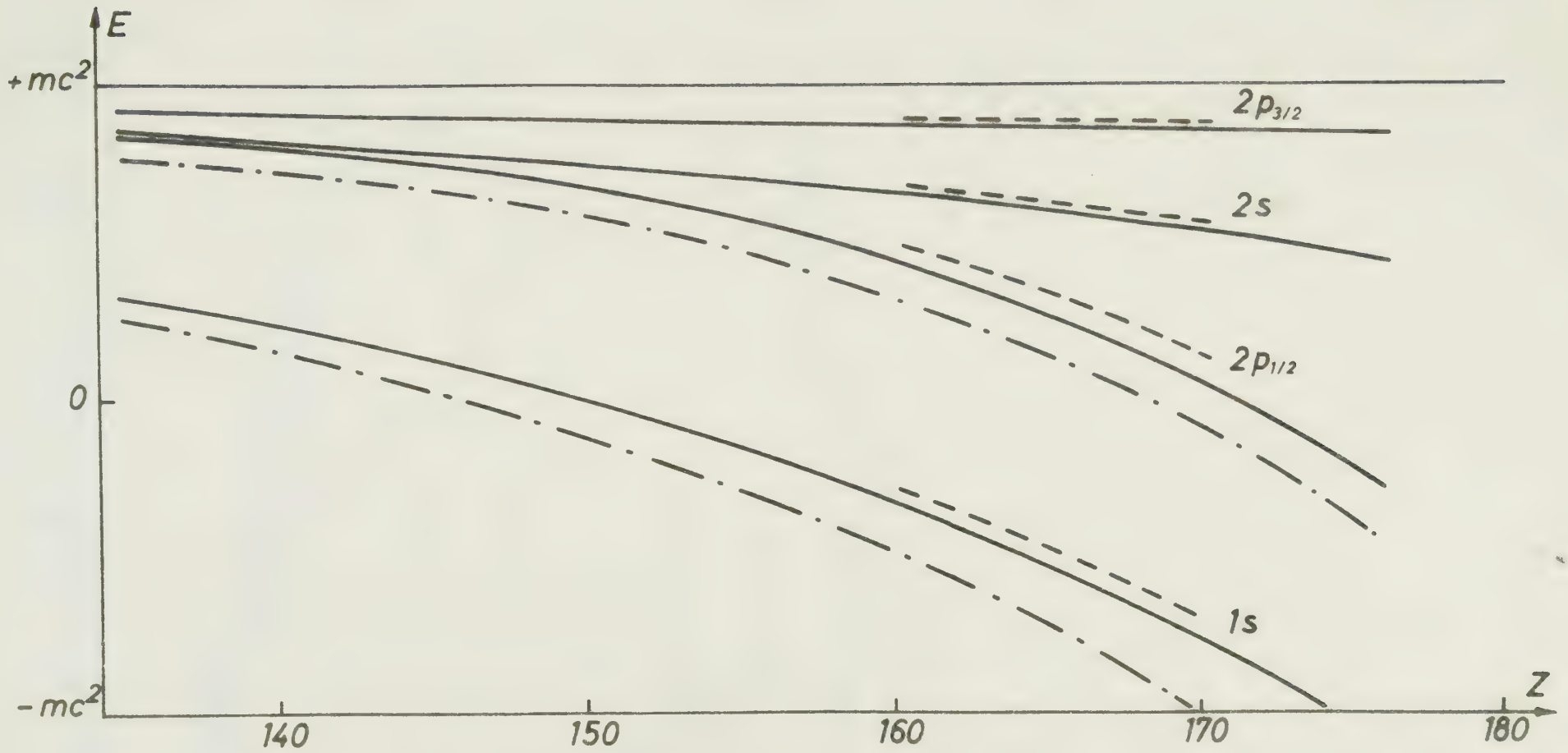

Das Periodensystem
der Elemente
Elektronen
Element
Ordnungszahl
Wertigkeit

Fig. 1



—·— Lösung des Wasserstoffproblems nach Pieper et.al.
——— mit Thomas-Fermi Potential
– – – mit selbstkonsistentem Potential

Fig. 2

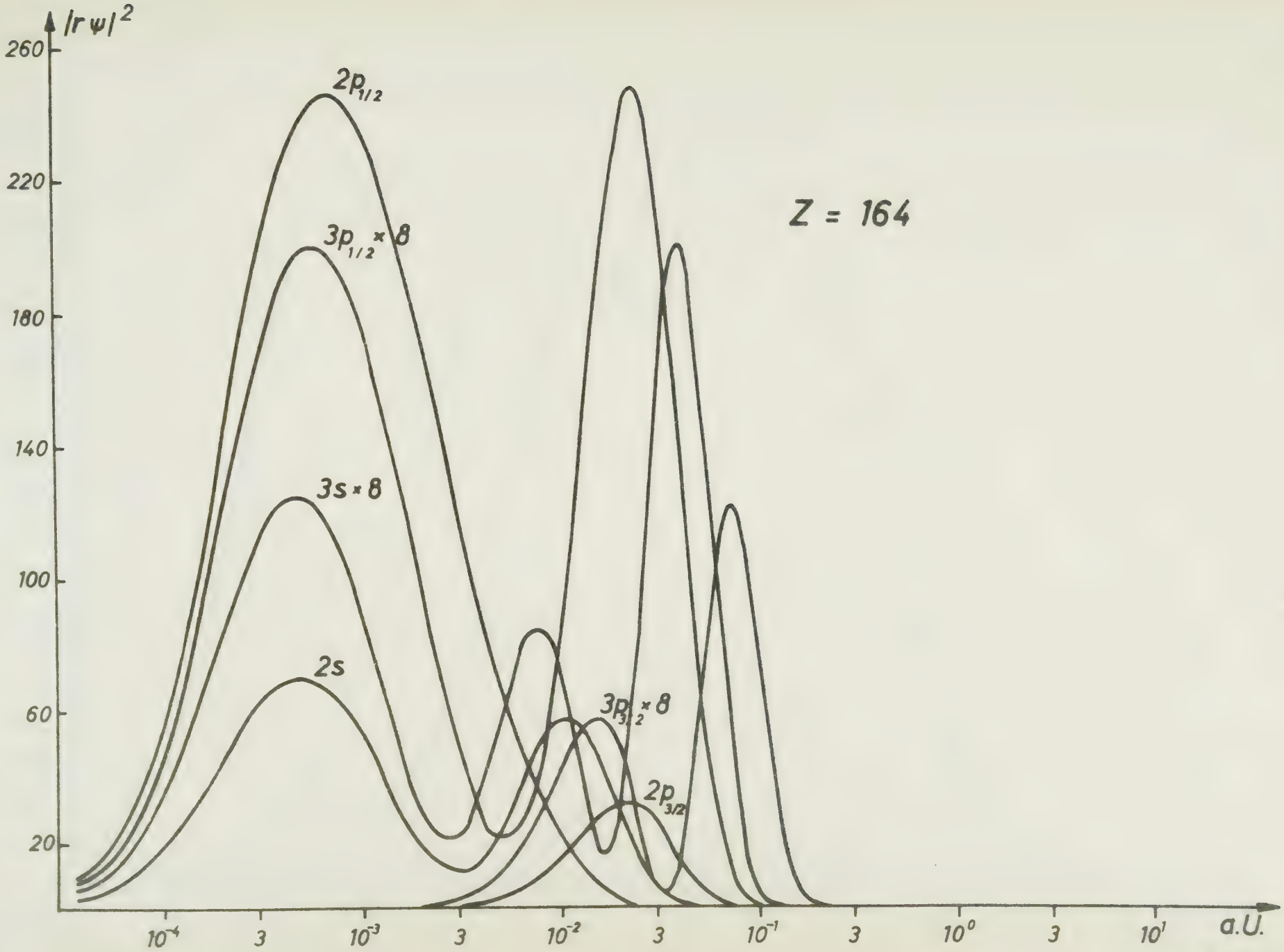

$|r\psi|^2$
260
220
180
140
100
60
20
$2p_{1/2}$
$3p_{1/2} \times 8$
$3s \times 8$
$2s$
$3p_{3/2} \times 8$
$2p_{3/2}$
Z = 164
10^{-4}
3
10^{-3}
3
10^{-2}
3
10^{-1}
3
10^{0}
3
10^{1}
a.U.

Fig. 3

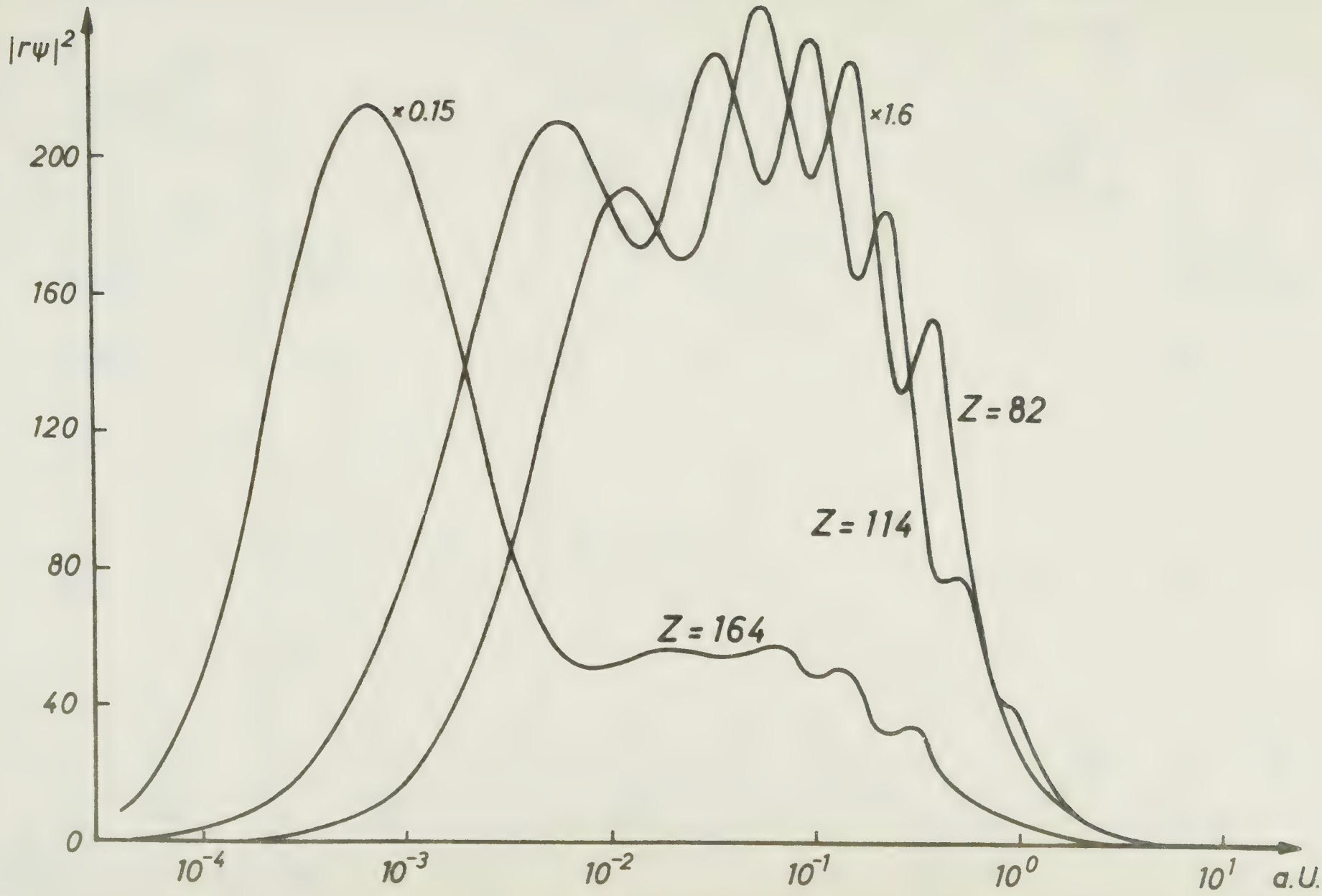

$|r\psi|^2$
200
160
120
80
40
0
×0.15
×1.6
Z = 82
Z = 114
Z = 164
10^{-4}
10^{-3}
10^{-2}
10^{-1}
10^{0}
10^{1}
a.U.

Fig. 4

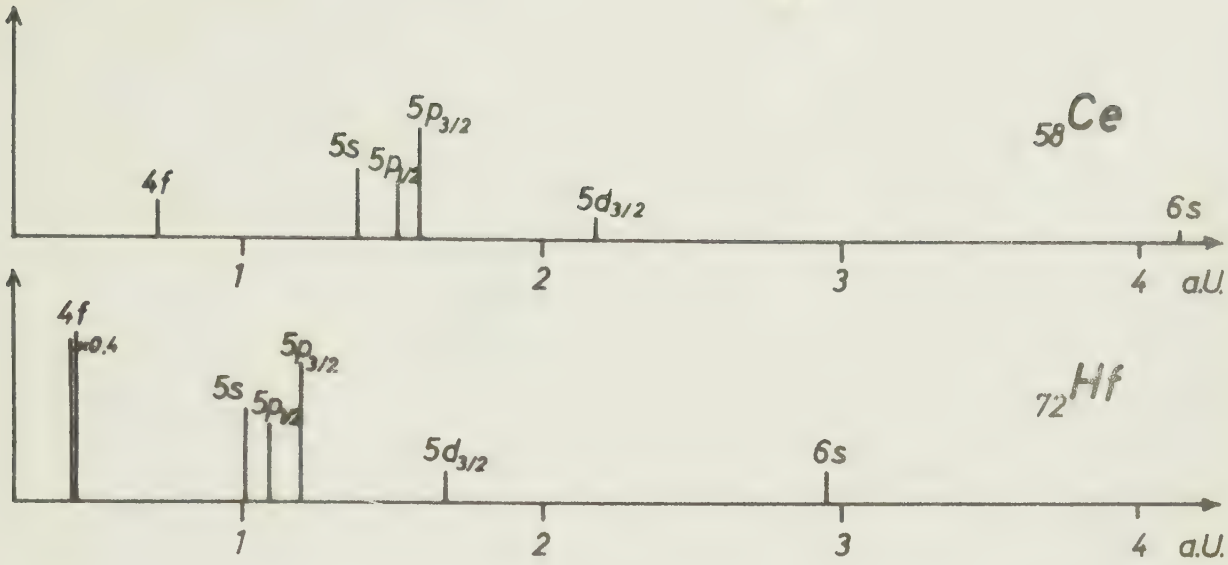


Fig. 5a

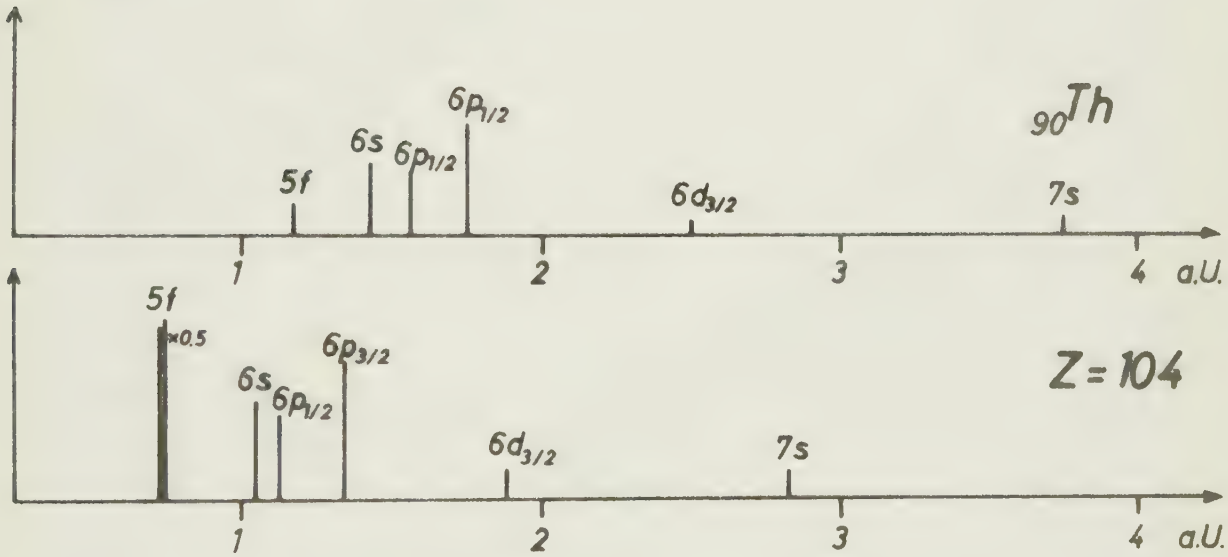


Fig. 5b

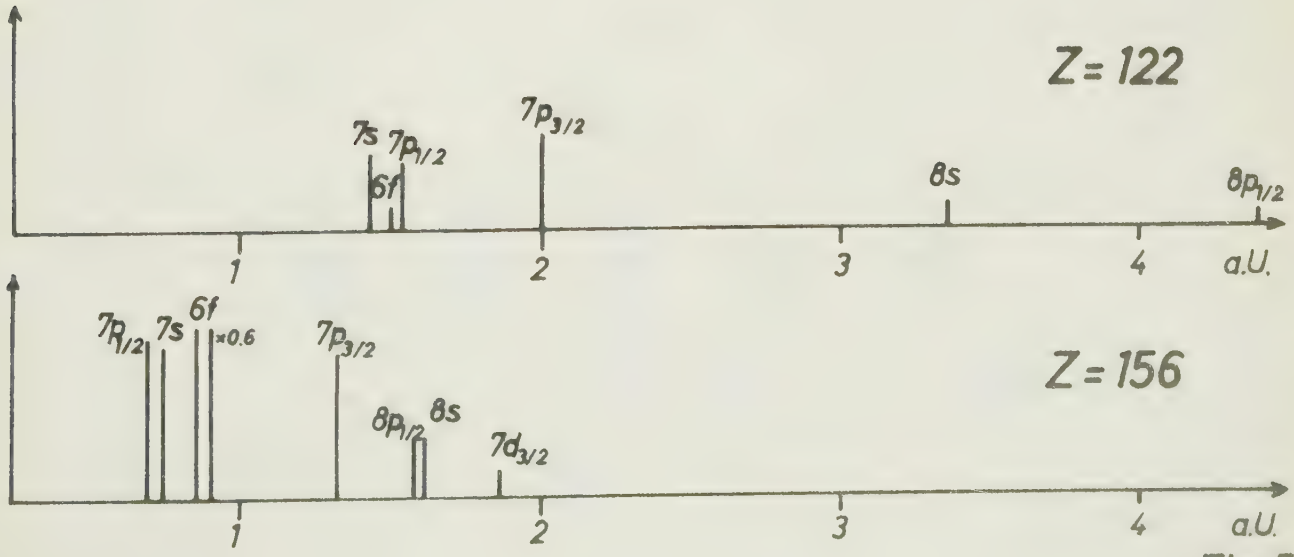


Fig. 5c

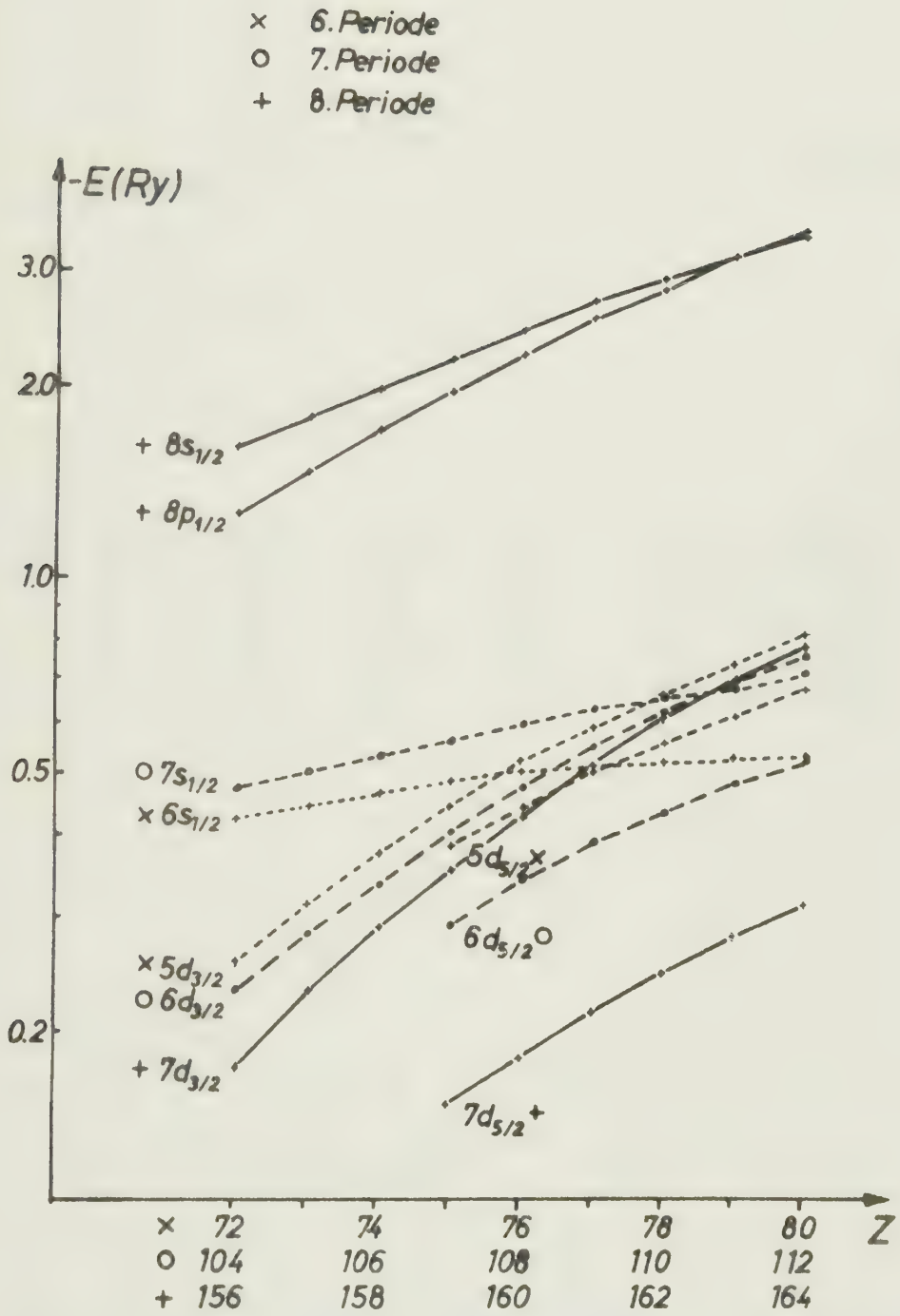

× 6. Periode
○ 7. Periode
+ 8. Periode
-E(Ry)
3.0
2.0
1.0
0.5
0.2
+ 8s1/2
+ 8p1/2
○ 7s1/2
× 6s1/2
5d5/2 ×
6d5/2 ○
× 5d3/2
○ 6d3/2
+ 7d3/2
7d5/2 +
× 72 74 76 78 80 Z
○ 104 106 108 110 112
+ 156 158 160 162 164

Fig. 6

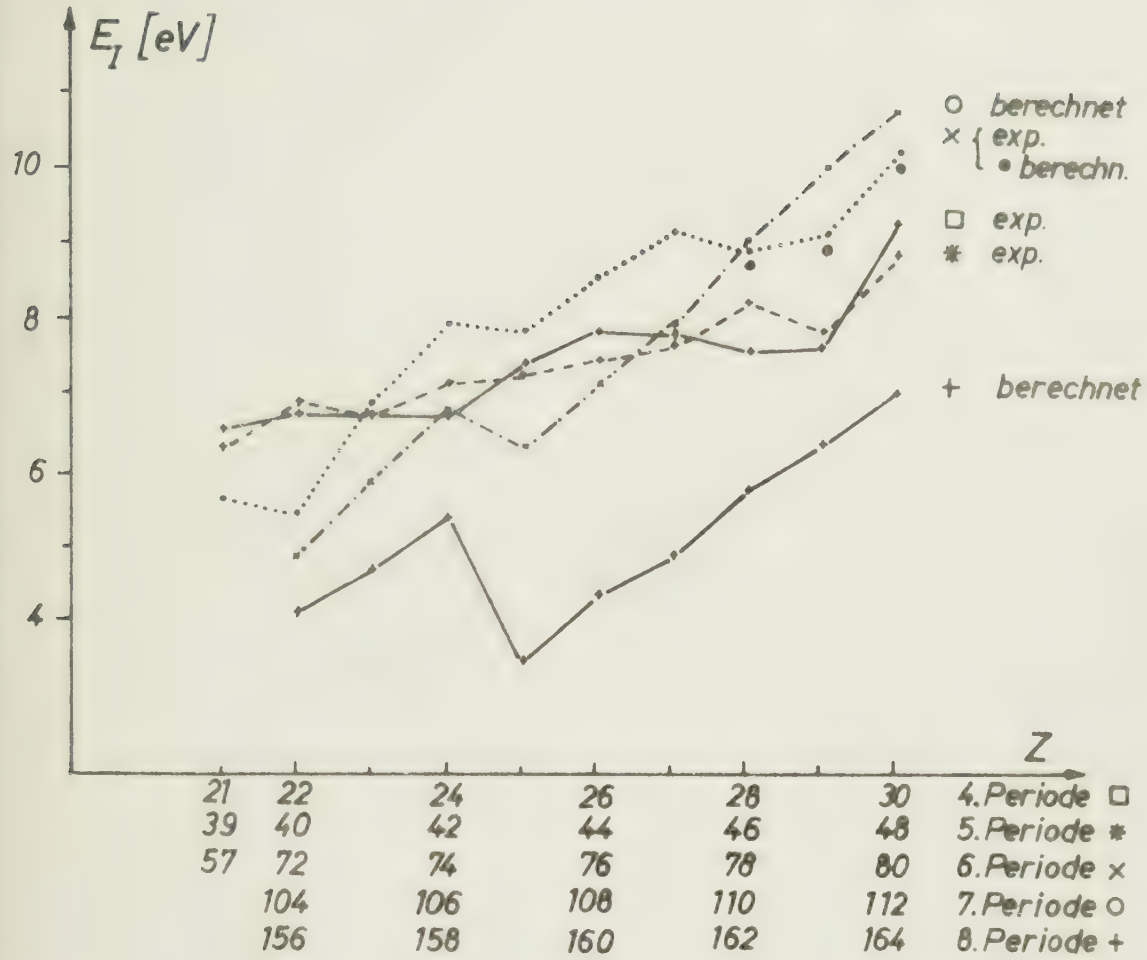

E_I [eV]
10
8
6
4
○ berechnet
× { exp.
• berechn.
□ exp.
✱ exp.
+ berechnet
Z
21 22 24 26 28 30 4. Periode □
39 40 42 44 46 48 5. Periode ✱
57 72 74 76 78 80 6. Periode ×
104 106 108 110 112 7. Periode ○
156 158 160 162 164 8. Periode +

Fig. 7

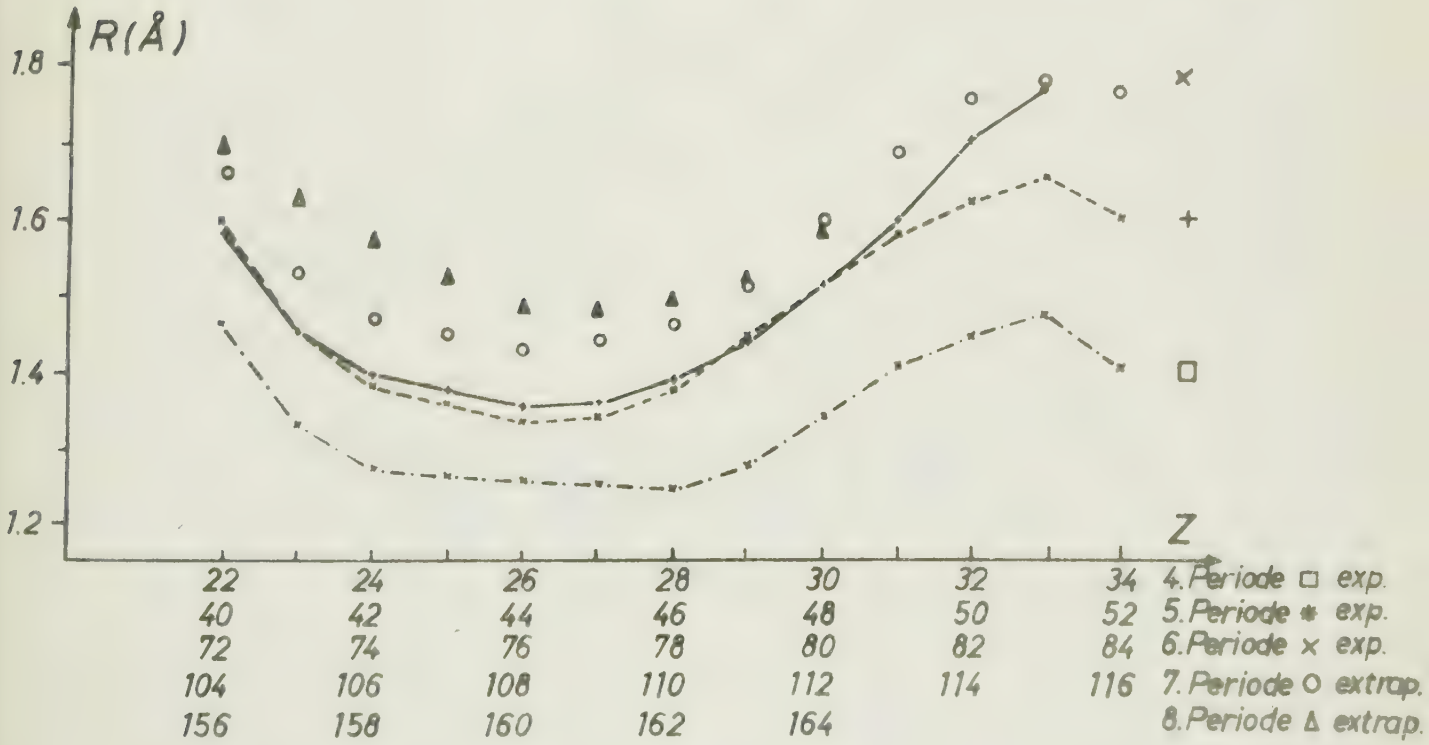

R(Å)
1.8
1.6
1.4
1.2
Z
22 24 26 28 30 32 34 4. Periode □ exp.
40 42 44 46 48 50 52 5. Periode ✱ exp.
72 74 76 78 80 82 84 6. Periode × exp.
104 106 108 110 112 114 116 7. Periode ○ extrap.
156 158 160 162 164 8. Periode Δ extrap.

Fig. 8

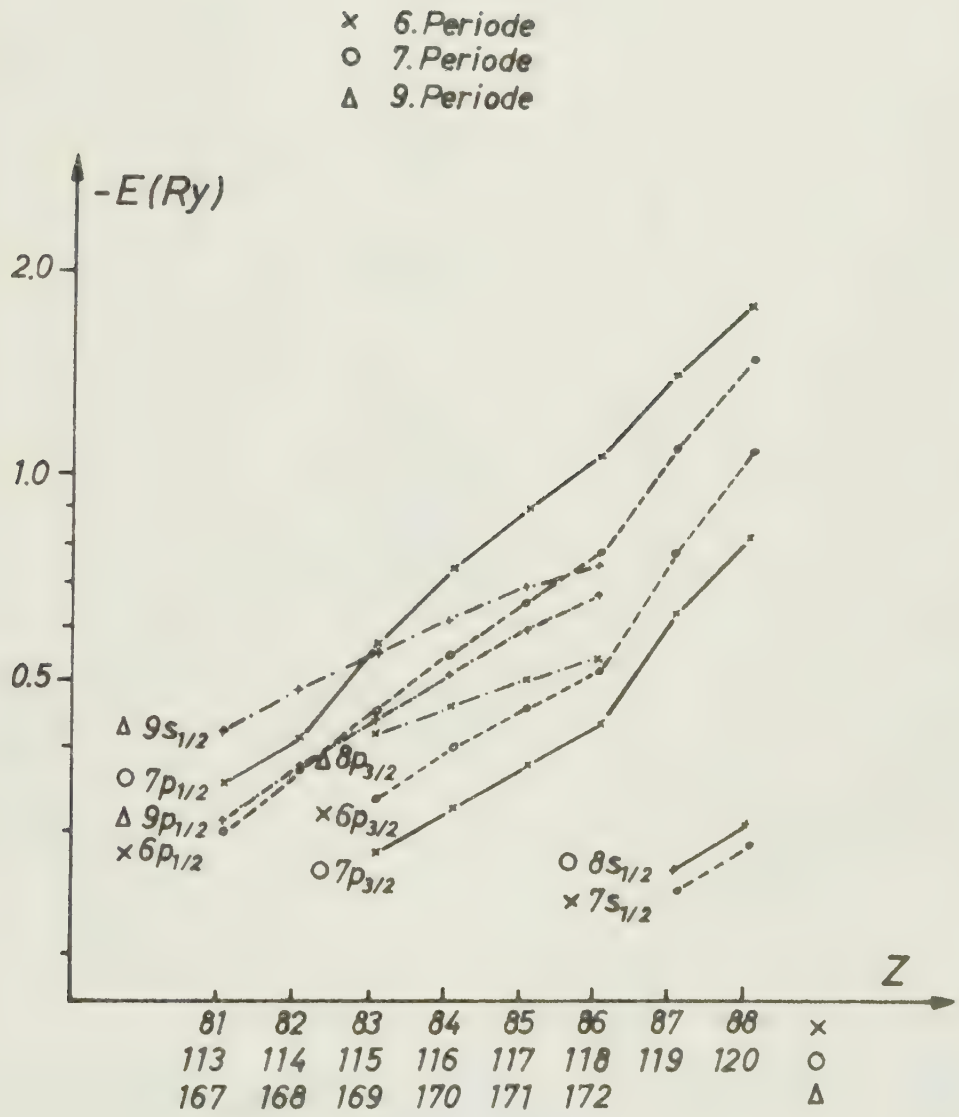

× 6. Periode
○ 7. Periode
Δ 9. Periode
-E(Ry)
2.0
1.0
0.5
Δ 9s1/2
○ 7p1/2
Δ 9p1/2
× 6p1/2
Δ 8p3/2
× 6p3/2
○ 7p3/2
○ 8s1/2
× 7s1/2
Z
81 82 83 84 85 86 87 88 ×
113 114 115 116 117 118 119 120 ○
167 168 169 170 171 172 Δ

Fig. 9

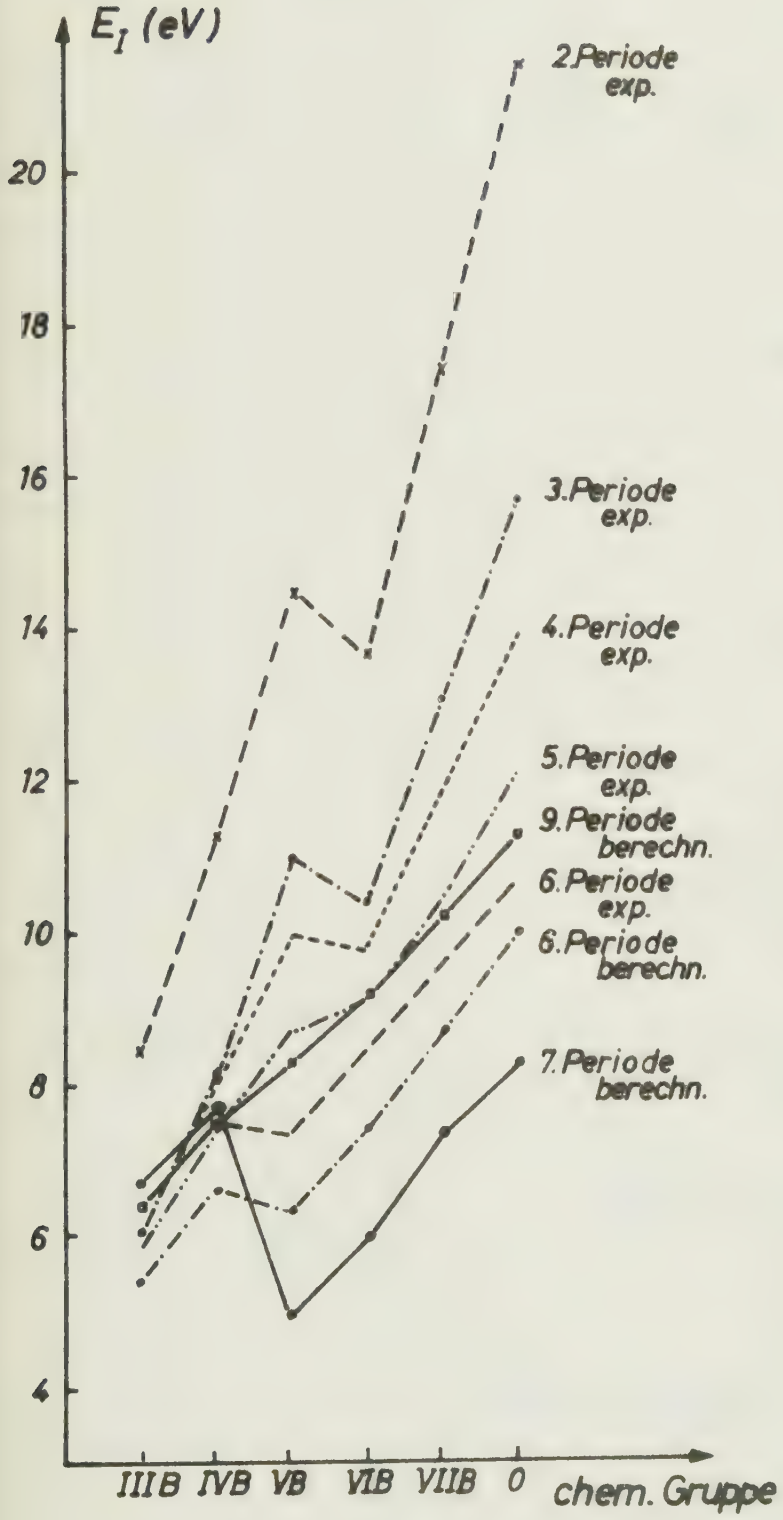

E_I (eV)
20
18
16
14
12
10
8
6
4
2.Periode exp.
3.Periode exp.
4.Periode exp.
5.Periode exp.
9.Periode berechn.
6.Periode exp.
6.Periode berechn.
7.Periode berechn.
IIIB
IVB
VB
VIB
VIIB
0
chem. Gruppe

Fig. 10

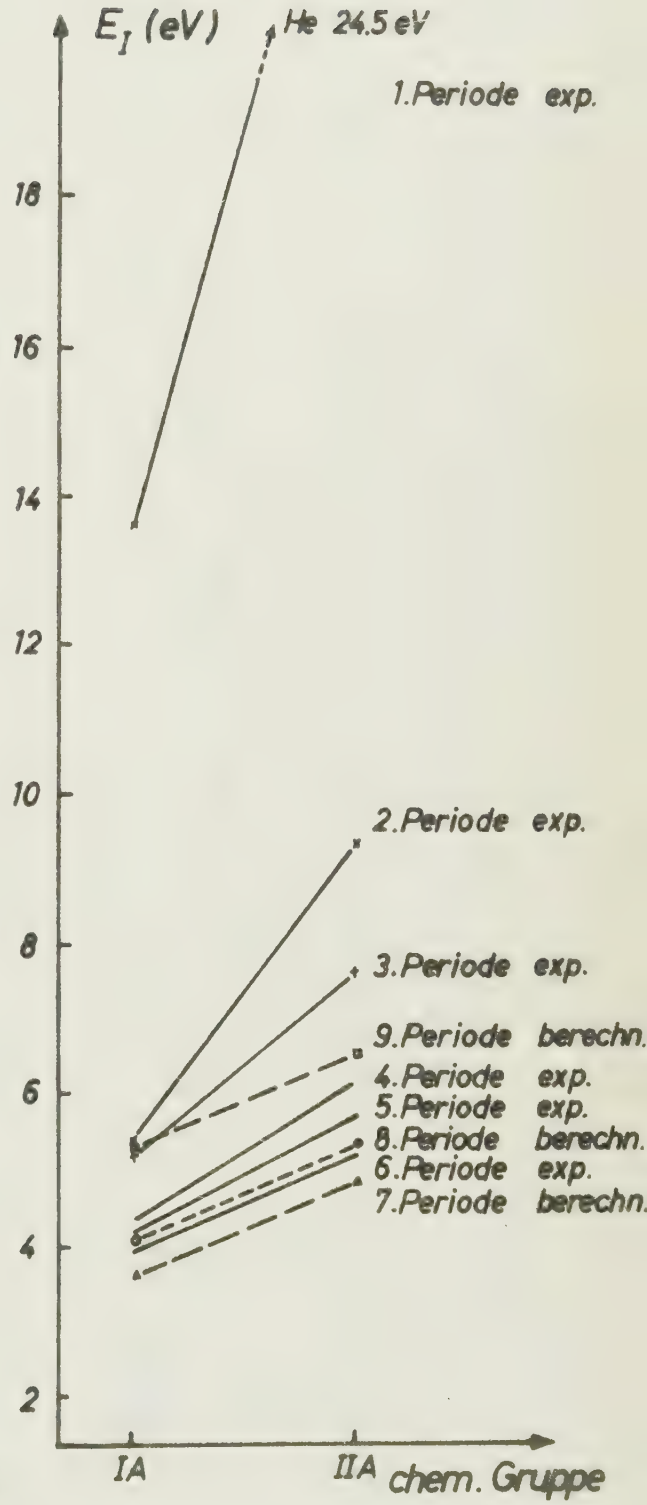

E_I (eV)
He 24.5 eV
1.Periode exp.
18
16
14
12
10
8
6
4
2
2.Periode exp.
3.Periode exp.
9.Periode berechn.
4.Periode exp.
5.Periode exp.
8.Periode berechn.
6.Periode exp.
7.Periode berechn.
IA
IIA
chem. Gruppe

Fig. 11

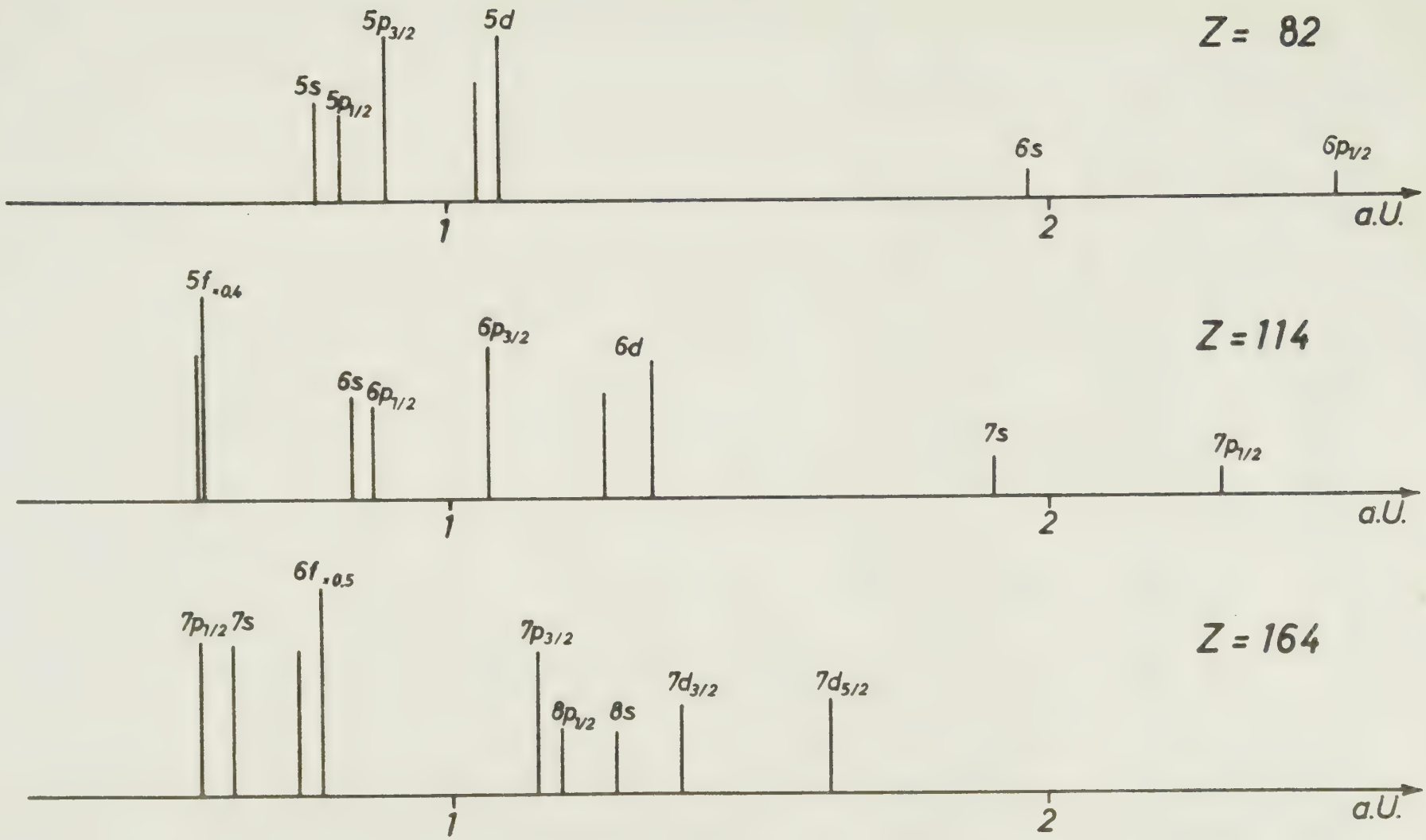

Z = 82
5s
5p1/2
5p3/2
5d
6s
6p1/2
1
2
a.U.
Z = 114
5f-0.4
6s
6p1/2
6p3/2
6d
7s
7p1/2
1
2
a.U.
Z = 164
7p1/2
7s
6f-0.5
7p3/2
8p1/2
8s
7d3/2
7d5/2
1
2
a.U.

Fig. 12

Herrn Prof. Dr. W. Greiner möchte ich für die Anregung zu dieser Arbeit und für das besondere Interesse, das er ihr entgegenbrachte, sehr herzlich danken.
Für die Überlassung des Rechenprogramms bin ich Herrn Prof. Liberman aus Los Alamos und Herrn Prof. Waber aus Chicago zu besonderem Dank verpflichtet. Herrn Dr. Mann danke ich für die vorzeitige Mitteilung seiner Ergebnisse.

Mein Dank gilt auch dem Deutschen Rechenzentrum in Darmstadt für viele kostenlose Rechenstunden auf der TR 440 und dem Zentralen Recheninstitut in Frankfurt, das mir zahlreiche Stunden auf der Univac 1108 zur Verfügung stellte.

Lebenslauf

Am 17. Juni 1941 wurde ich als Sohn des Studienrates Dr. Heinz Fricke und seiner Frau Mathilde, geb. Berger, in Pr. Friedland in der Grenzmark Posen-Westpreußen geboren. Nach der Flucht 1945 fanden wir in Weilburg/Lahn Zuflucht, wo ich im Herbst 1947 eingeschult wurde. 1949 zogen wir nach Frankfurt/Main um. Dort besuchte ich ab 1951 das Goethe-Gymnasium, an dem ich 1960 das Abitur ablegte. Nach zwei Jahren bei der Bundeswehr begann ich 1962 das Studium der Physik an der TH Darmstadt, an der ich im Herbst 1964 das Vordiplom ablegte. Danach wurde ich in die Studienstiftung des Deutschen Volkes aufgenommen. Im Januar 1967 bestand ich das Diplom bei Prof. Kienle mit einer Arbeit über Mößbauerspektroskopie.

Seit März 1967 arbeite ich in der Abteilung von Prof. Dr. W. Greiner am Institut für Theoretische Physik in Frankfurt.

Meine akademischen Lehrer waren die Herren Professoren Walther, Graf, Kohlschütter, Klotter, v.Butlar, Hellwege, Brix, Kienle, Scherzer, Lingenberg, Wölfel, Fick, Greiner, Schopper, Huber, Hensen.